

## TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

**PCT****NOTIFICATION DE L'ENREGISTREMENT  
D'UN CHANGEMENT**(règle 92bis.1 et  
instruction administrative 422 du PCT)

Date d'expédition (jour/mois/année)

14 décembre 1999 (14.12.99)

Référence du dossier du déposant ou du mandataire

R 97076

Demande internationale no

PCT/EP98/03858

Expéditeur: le BUREAU INTERNATIONAL

Destinataire:

ESSON, Jean-Pierre  
 Rhodia Services  
 Direction de la Propriété  
 Industrielle  
 Crit-Carrières  
 Boîte postale 62  
 F-69192 Saint-Fons Cedex  
 FRANCE

1. Les renseignements suivants étaient enregistrés en ce qui concerne:

 le déposant       l'inventeur       le mandataire       le représentant commun

Nom et adresse

NYLTECH ITALIA  
 Via 1o Maggio, 80  
 I-20020 Ceriano Laghetto  
 ITALIE

Nationalité (nom de l'Etat)

IT

Domicile (nom de l'Etat)

IT

no de téléphone

no de télécopieur

no de télémprimeur

2. Le Bureau international notifie au déposant que le changement indiqué ci-après a été enregistré en ce qui concerne:

 la personne       le nom       l'adresse       la nationalité       le domicile

Nom et adresse

RHODIA ENGINEERING PLASTICS S.R.L.  
 Via 1 Maggio 80  
 I-20020 Ceriano Laghetto  
 ITALIE

Nationalité (nom de l'Etat)

IT

Domicile (nom de l'Etat)

IT

no de téléphone

no de télécopieur

no de télémprimeur

3. Observations complémentaires, le cas échéant:

4. Une copie de cette notification a été envoyée:

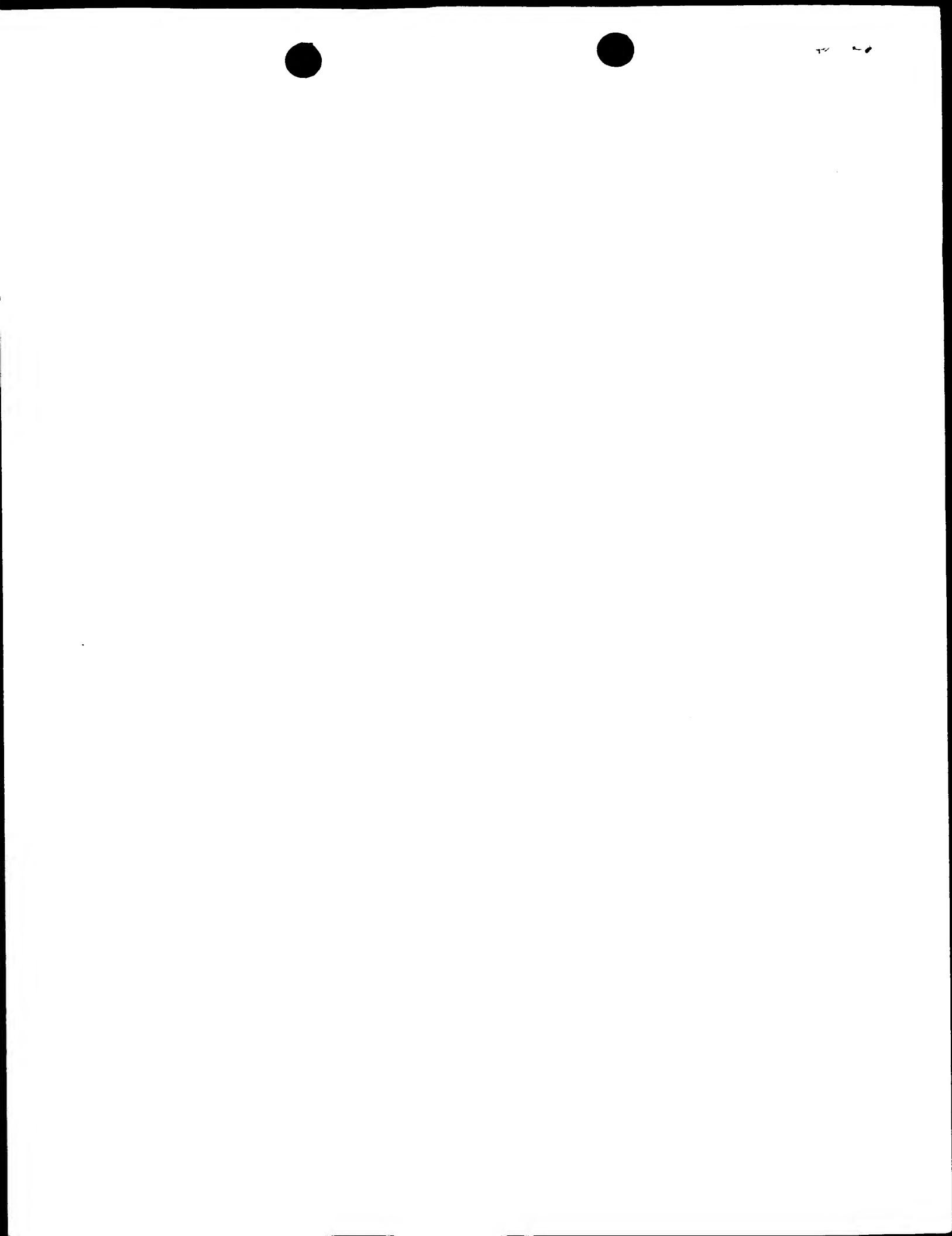
<input checked="" type="checkbox"/> à l'office récepteur	<input type="checkbox"/> aux offices désignés concernés
<input type="checkbox"/> à l'administration chargée de la recherche internationale	<input checked="" type="checkbox"/> aux offices élus concernés
<input checked="" type="checkbox"/> à l'administration chargée de l'examen préliminaire international	<input type="checkbox"/> autre destinataire:

Bureau international de l'OMPI  
 34, chemin des Colombettes  
 1211 Genève 20, Suisse  
 no de télécopieur (41-22) 740.14.35

Fonctionnaire autorisé:

Athina Nickitas-Etienne

no de téléphone (41-22) 338.83.38



TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

PCT

NOTIFICATION DE L'ENREGISTREMENT  
D'UN CHANGEMENT

(règle 92bis.1 et  
instruction administrative 422 du PCT)

Date d'expédition (jour/mois/année)

14 décembre 1999 (14.12.99)

Expéditeur: le BUREAU INTERNATIONAL

Destinataire:

ESSON, Jean-Pierre  
Rhodia Services  
Direction de la Propriété  
Industrielle  
Crit-Carrières  
Boîte postale 62  
F-69192 Saint-Fons Cedex  
FRANCE

Référence du dossier du déposant ou du mandataire

R 97076

NOTIFICATION IMPORTANTE

Demande internationale no

PCT/EP98/03858

Date du dépôt international (jour/mois/année)

24 juin 1998 (24.06.98)

1. Les renseignements suivants étaient enregistrés en ce qui concerne:

le déposant     l'inventeur     le mandataire     le représentant commun

Nom et adresse

NYLTECH ITALIA  
Via 1o Maggio, 80  
I-20020 Ceriano Laghetto  
ITALIE

Nationalité (nom de l'Etat)  
IT

Domicile (nom de l'Etat)  
IT

no de téléphone

no de télécopieur

no de télécopieur

2. Le Bureau international notifie au déposant que le changement indiqué ci-après a été enregistré en ce qui concerne:

la personne     le nom     l'adresse     la nationalité     le domicile

Nom et adresse

RHODIA ENGINEERING PLASTICS S.R.L.  
Via 1 Maggio 80  
I-20020 Ceriano Laghetto  
ITALIE

Nationalité (nom de l'Etat)  
IT

Domicile (nom de l'Etat)  
IT

no de téléphone

no de télécopieur

no de télécopieur

3. Observations complémentaires, le cas échéant:

4. Une copie de cette notification a été envoyée:

à l'office récepteur     aux offices désignés concernés  
 à l'administration chargée de la recherche internationale     aux offices élus concernés  
 à l'administration chargée de l'examen préliminaire international     autre destinataire:

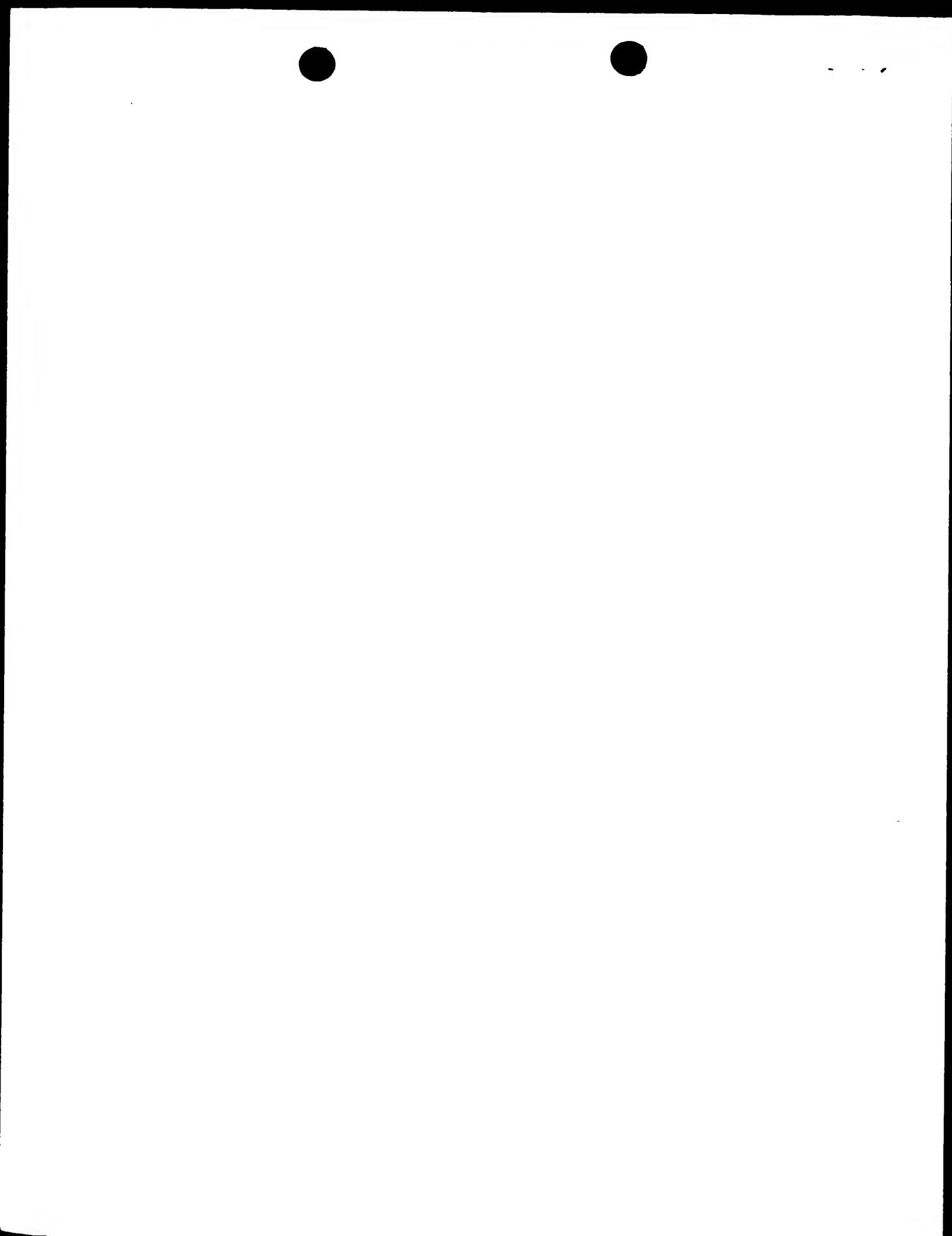
Bureau international de l'OMPI  
34, chemin des Colombettes  
1211 Genève 20, Suisse

Fonctionnaire autorisé:

Athina Nickitas-Etienne

no de télécopieur (41-22) 740.14.35

no de téléphone (41-22) 338.83.38



## TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

PCT

NOTIFICATION D'ELECTION  
(règle 61.2 du PCT)

Expéditeur: le BUREAU INTERNATIONAL

Destinataire:

United States Patent and Trademark  
Office  
(Box PCT)  
Crystal Plaza 2  
Washington, DC 20231  
ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

en sa qualité d'office élu

Date d'expédition (jour/mois/année) 08 avril 1999 (08.04.99)	Destinataire: United States Patent and Trademark Office (Box PCT) Crystal Plaza 2 Washington, DC 20231 ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE
Demande internationale no PCT/EP98/03858	Référence du dossier du déposant ou du mandataire R 97076
Date du dépôt international (jour/mois/année) 24 juin 1998 (24.06.98)	Date de priorité (jour/mois/année) 17 juillet 1997 (17.07.97)
Déposant DI SILVESTRO, Giuseppe etc	

1. L'office désigné est avisé de son élection qui a été faite:

dans la demande d'examen préliminaire international présentée à l'administration chargée de l'examen préliminaire international le:

04 février 1999 (04.02.99)

dans une déclaration visant une élection ultérieure déposée auprès du Bureau international le:

\_\_\_\_\_

2. L'élection  a été faite

n'a pas été faite

avant l'expiration d'un délai de 19 mois à compter de la date de priorité ou, lorsque la règle 32 s'applique, dans le délai visé à la règle 32.2b).

Bureau international de l'OMPI 34, chemin des Colombettes 1211 Genève 20, Suisse  no de télécopieur: (41-22) 740.14.35	Fonctionnaire autorisé  Jean-Marie McAdams  no de téléphone: (41-22) 338.83.38
--	--



## TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

PCT

NOTIFICATION DE L'ENREGISTREMENT  
D'UN CHANGEMENT(règle 92bis.1 et  
instruction administrative 422 du PCT)Date d'expédition (jour/mois/année)  
14 décembre 1999 (14.12.99)Référence du dossier du déposant ou du mandataire  
R 97076Demande internationale no  
PCT/EP98/03858

Expéditeur: le BUREAU INTERNATIONAL

Destinataire:

ESSON, Jean-Pierre  
Rhodia Services  
Direction de la Propriété  
Industrielle  
Crit-Carrières  
Boîte postale 62  
F-69192 Saint-Fons Cedex  
FRANCE

REÇU 20 DEC. 1999

## NOTIFICATION IMPORTANTE

Date du dépôt international (jour/mois/année)  
24 juin 1998 (24.06.98)

1. Les renseignements suivants étaient enregistrés en ce qui concerne:

 le déposant  l'inventeur  le mandataire  le représentant communNom et adresse  
NYLTECH ITALIA  
Via 1o Maggio, 80  
I-20020 Ceriano Laghetto  
ITALIE

Nationalité (nom de l'Etat)	Domicile (nom de l'Etat)
IT	IT
no de téléphone	
no de télécopieur	
no de téléimprimeur	

2. Le Bureau international notifie au déposant que le changement indiqué ci-après a été enregistré en ce qui concerne:

 la personne  le nom  l'adresse  la nationalité  le domicileNom et adresse  
RHODIA ENGINEERING PLASTICS S.R.L.  
Via 1 Maggio 80  
I-20020 Ceriano Laghetto  
ITALIE

Nationalité (nom de l'Etat)	Domicile (nom de l'Etat)
IT	IT
no de téléphone	
no de télécopieur	
no de téléimprimeur	

3. Observations complémentaires, le cas échéant:

4. Une copie de cette notification a été envoyée:

<input checked="" type="checkbox"/> à l'office récepteur	<input type="checkbox"/> aux offices désignés concernés
<input type="checkbox"/> à l'administration chargée de la recherche internationale	<input checked="" type="checkbox"/> aux offices élus concernés
<input checked="" type="checkbox"/> à l'administration chargée de l'examen préliminaire international	<input type="checkbox"/> autre destinataire:

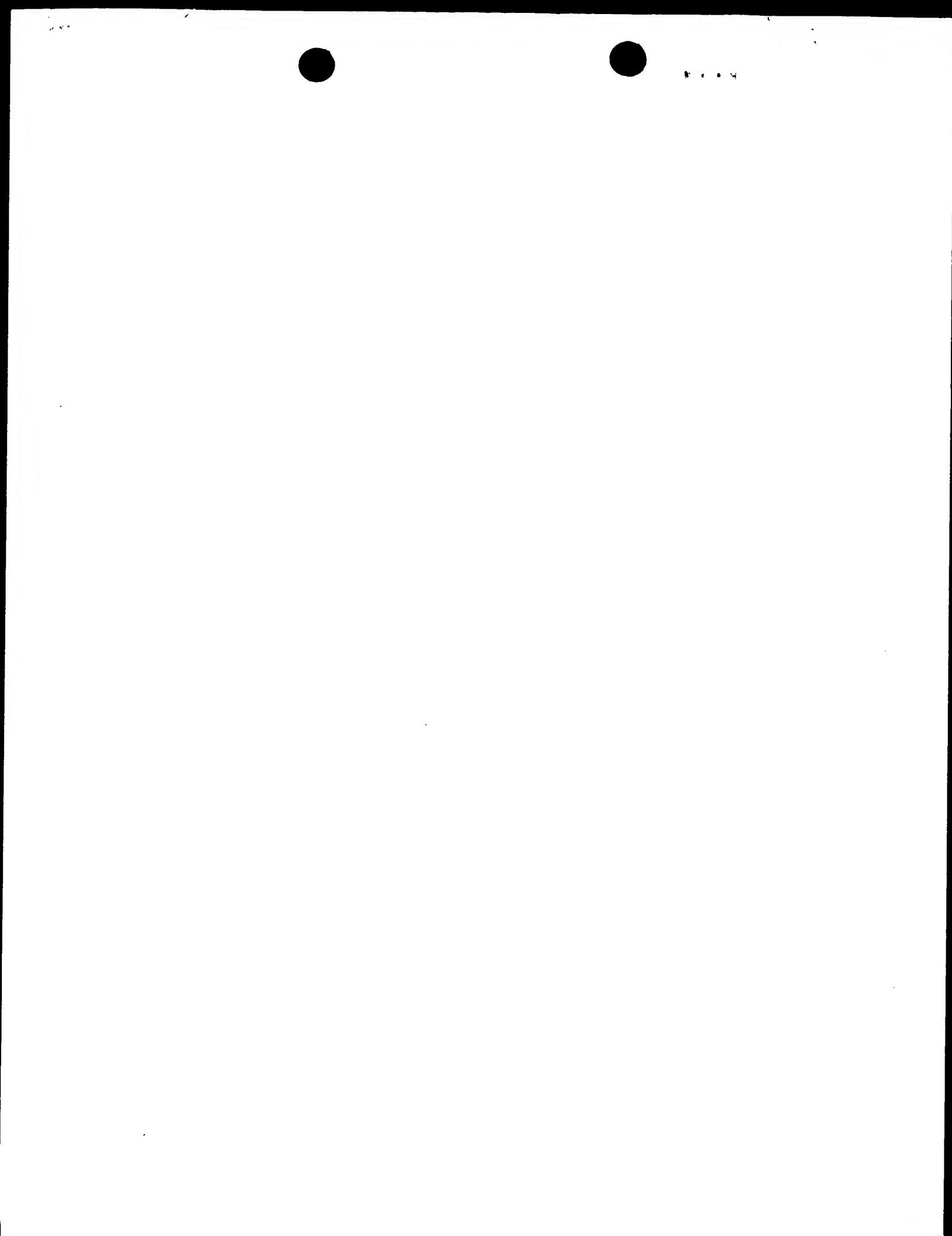
Bureau international de l'OMPI  
34, chemin des Colombettes  
1211 Genève 20, Suisse  
no de télécopieur (41-22) 740.14.35

Fonctionnaire autorisé:

Athina Nickitas-Etienne

no de téléphone (41-22) 338.83.38

003010252



**TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS**  
**PCT**

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

(article 18 et règles 43 et 44 du PCT)

Référence du dossier du déposant ou du mandataire R 97076	<b>POUR SUITE A DONNER</b> voir la notification de transmission du rapport de recherche internationale (formulaire PCT/ISA/220) et, le cas échéant, le point 5 ci-après	
Demande internationale n° PCT/EP 98/ 03858	Date du dépôt international ( <i>jour/mois/année</i> ) 24/06/1998	(Date de priorité (la plus ancienne) ( <i>jour/mois/année</i> ) 17/07/1997
Déposant  NYLTECH ITALIA et al.		

Le présent rapport de recherche internationale, établi par l'administration chargée de la recherche internationale, est transmis au déposant conformément à l'article 18. Une copie en est transmise au Bureau international.

Ce rapport de recherche internationale comprend 2 feuilles.

Il est aussi accompagné d'une copie de chaque document relatif à l'état de la technique qui y est cité.

1.  Il a été estimé que certaines revendications ne pouvaient pas faire l'objet d'une recherche(voir le cadre I).
2.  Il y a absence d'unité de l'invention(voir le cadre II).

3.  La demande internationale contient la divulgation d'un listage de séquence de nucléotides ou d'acides aminés et la recherche internationale a été effectuée sur la base du listage de séquence
  - déposé avec la demande internationale
  - fourni par le déposant séparément de la demande internationale
    - sans être accompagnée d'une déclaration selon laquelle il n'inclut pas d'éléments allant au-delà de la divulgation faite dans la demande internationale telle qu'elle a été déposée.
  - transcrit par l'administration

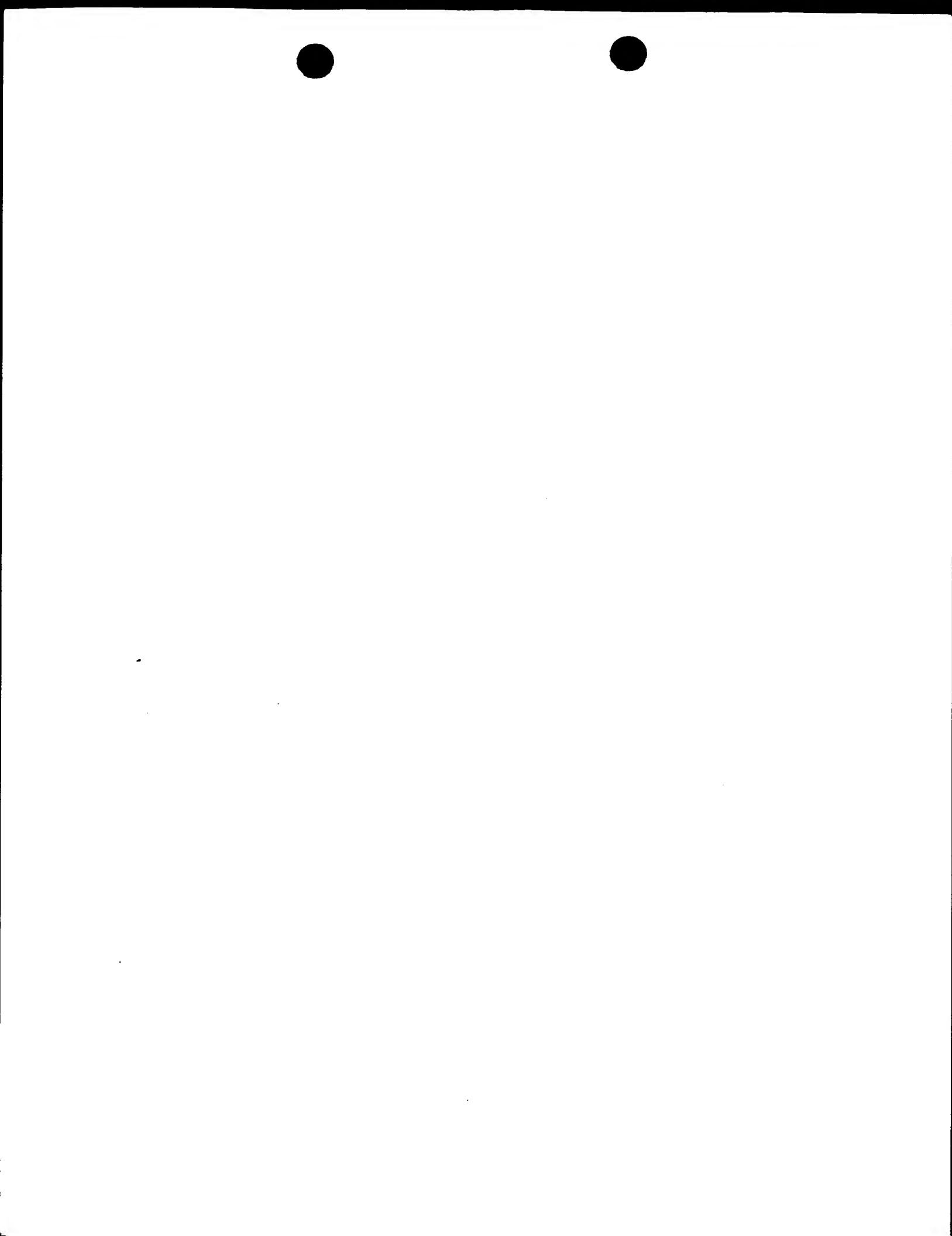
4. En ce qui concerne le titre,  le texte est approuvé tel qu'il a été remis par le déposant.  
 Le texte a été établi par l'administration et a la teneur suivante:

**COPOLYAMIDE THERMOPLASTIQUE, COMPOSITION A BASE DE CELUI-CI**

5. En ce qui concerne l'**abrégé**,
  - le texte est approuvé tel qu'il a été remis par le déposant
  - le texte (reproduit dans le cadre III) a été établi par l'administration conformément à la règle 38.2b). Le déposant peut présenter des observations à l'administration dans un délai d'un mois à compter de la date d'expédition du présent rapport de recherche internationale.

6. La figure **des dessins** à publier avec l'**abrégé** est la suivante:  
 Figure n° \_\_\_\_\_
  - suggérée par le déposant.
  - parce que le déposant n'a pas suggéré de figure.
  - parce que cette figure caractérise mieux l'invention.

Aucune des figures n'est à publier.



# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Document Internationale No  
EP 98/03858

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE  
CIB 6 C08G69/00 C08G69/26 C08G69/32 C08G83/00

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

## B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)

CIB 6 C08G

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés)

## C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	WO 95 06081 A (ALLIED SIGNAL INC) 2 mars 1995 ----	
A	WO 93 09162 A (DU PONT) 13 mai 1993 ----	
A	WO 92 08749 A (CORNELL RES FOUNDATION INC) 29 mai 1992 -----	



Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents



Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

### ° Catégories spéciales de documents cités:

- "A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
- "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
- "L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)
- "O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
- "P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention

"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément

"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier

"&" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

11 septembre 1998

21/09/1998

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale  
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Leroy, A



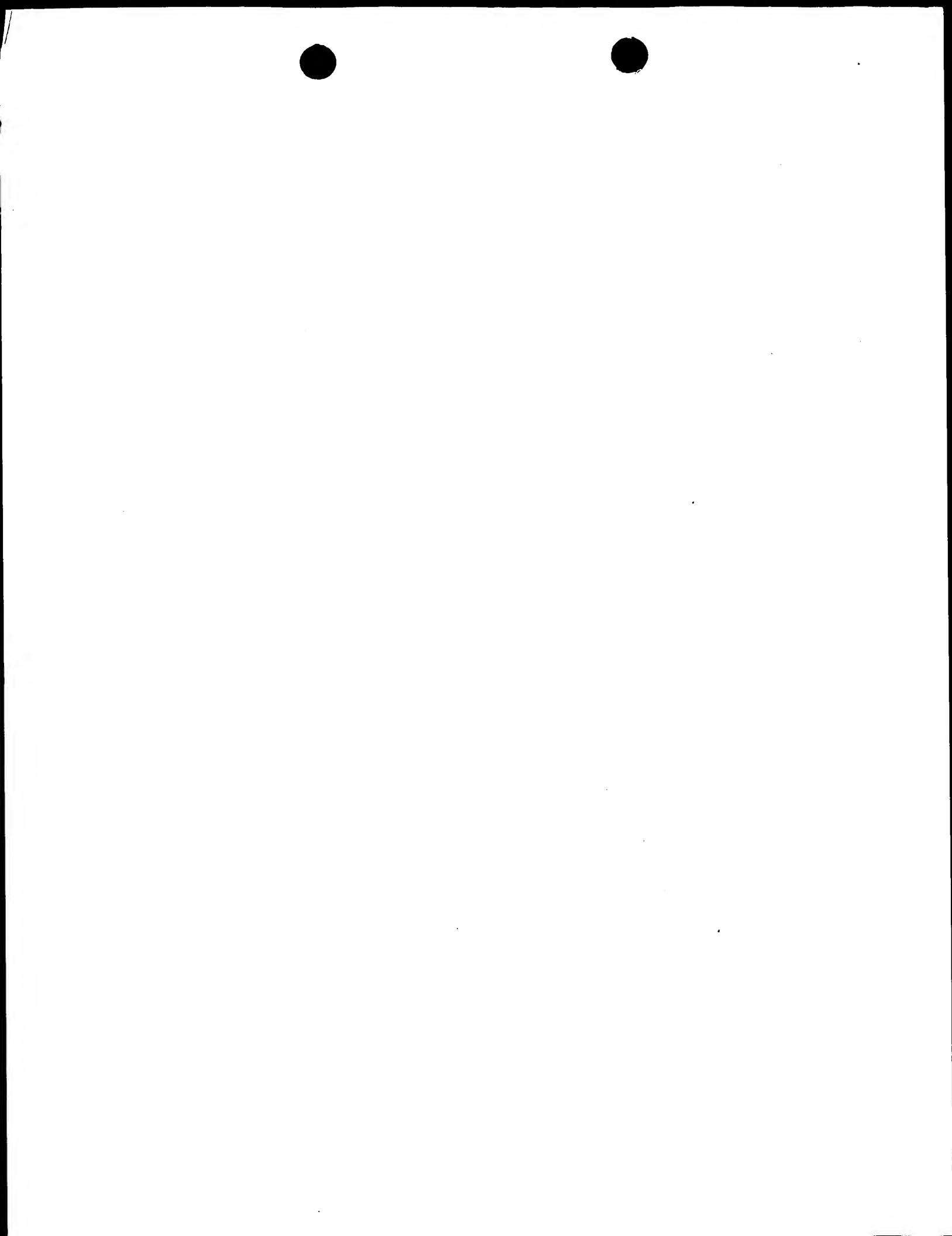
## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.

/EP 98/03858

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
WO 9506081	A	02-03-1995	US	5493000 A	20-02-1996
WO 9309162	A	13-05-1993	US	5264543 A	23-11-1993
			CA	2120922 A	13-05-1993
			EP	0610400 A	17-08-1994
			JP	7500370 T	12-01-1995
			US	5321162 A	14-06-1994
WO 9208749	A	29-05-1992	AT	152147 T	15-05-1997
			CA	2096144 A	20-05-1992
			DE	69125846 D	28-05-1997
			DE	69125846 T	27-11-1997
			EP	0558556 A	08-09-1993
			JP	6502442 T	17-03-1994
			US	5514764 A	07-05-1996



# TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

PCT

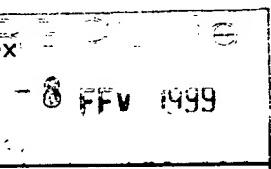
## AVIS INFORMANT LE DEPOSANT DE LA COMMUNICATION DE LA DEMANDE INTERNATIONALE AUX OFFICES DESIGNES

(règle 47.1.c), première phrase, du PCT)

Expéditeur: le BUREAU INTERNATIONAL

Destinataire:

ESSON, Jean-Pierre  
Rhodia Services  
Direction de la Propriété  
Industrielle  
Crit-Carrières  
Boîte postale 62  
F-69192 Saint-Fons Cedex  
FRANCE



Date d'expédition (jour/mois/année)
28 janvier 1999 (28.01.99)

Référence du dossier du déposant ou du mandataire
R 97076

## AVIS IMPORTANT

Demande internationale no PCT/EP98/03858	Date du dépôt international (jour/mois/année) 24 juin 1998 (24.06.98)	Date de priorité (jour/mois/année) 17 juillet 1997 (17.07.97)
Déposant NYLTECH ITALIA etc		

- Il est notifié par la présente qu'à la date indiquée ci-dessus comme date d'expédition de cet avis, le Bureau international a communiqué, comme le prévoit l'article 20, la demande internationale aux offices désignés suivants:  
AU, BR, CA, CN, EP, IL, JP, KP, KR, US

Conformément à la règle 47.1.c), troisième phrase, ces offices acceptent le présent avis comme preuve déterminante du fait que la communication de la demande internationale a bien eu lieu à la date d'expédition indiquée plus haut, et le déposant n'est pas tenu de remettre de copie de la demande internationale à l'office ou aux offices désignés.

- Les offices désignés suivants ont renoncé à l'exigence selon laquelle cette communication doit être effectuée à cette date:  
AL, AM, AP, AT, AZ, BA, BB, BG, BY, CH, CU, CZ, DE, DK, EA, EE, ES, FI, GB, GE, HU, IS, KE, KG, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, OA, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, UZ, VN  
La communication sera effectuée seulement sur demande de ces offices. De plus, le déposant n'est pas tenu de remettre de copie de la demande internationale aux offices en question (règle 49.1.a-bis)).
- Le présent avis est accompagné d'une copie de la demande internationale publiée par le Bureau international le 28 janvier 1999 (28.01.99) sous le numéro WO 99/03909

## RAPPEL CONCERNANT LE CHAPITRE II (article 31.2)a) et règle 54.2)

Si le déposant souhaite reporter l'ouverture de la phase nationale jusqu'à 30 mois (ou plus pour ce qui concerne certains offices) à compter de la date de priorité, la demande d'examen préliminaire international doit être présentée à l'administration compétente chargée de l'examen préliminaire international avant l'expiration d'un délai de 19 mois à compter de la date de priorité.

Il appartient exclusivement au déposant de veiller au respect du délai de 19 mois.

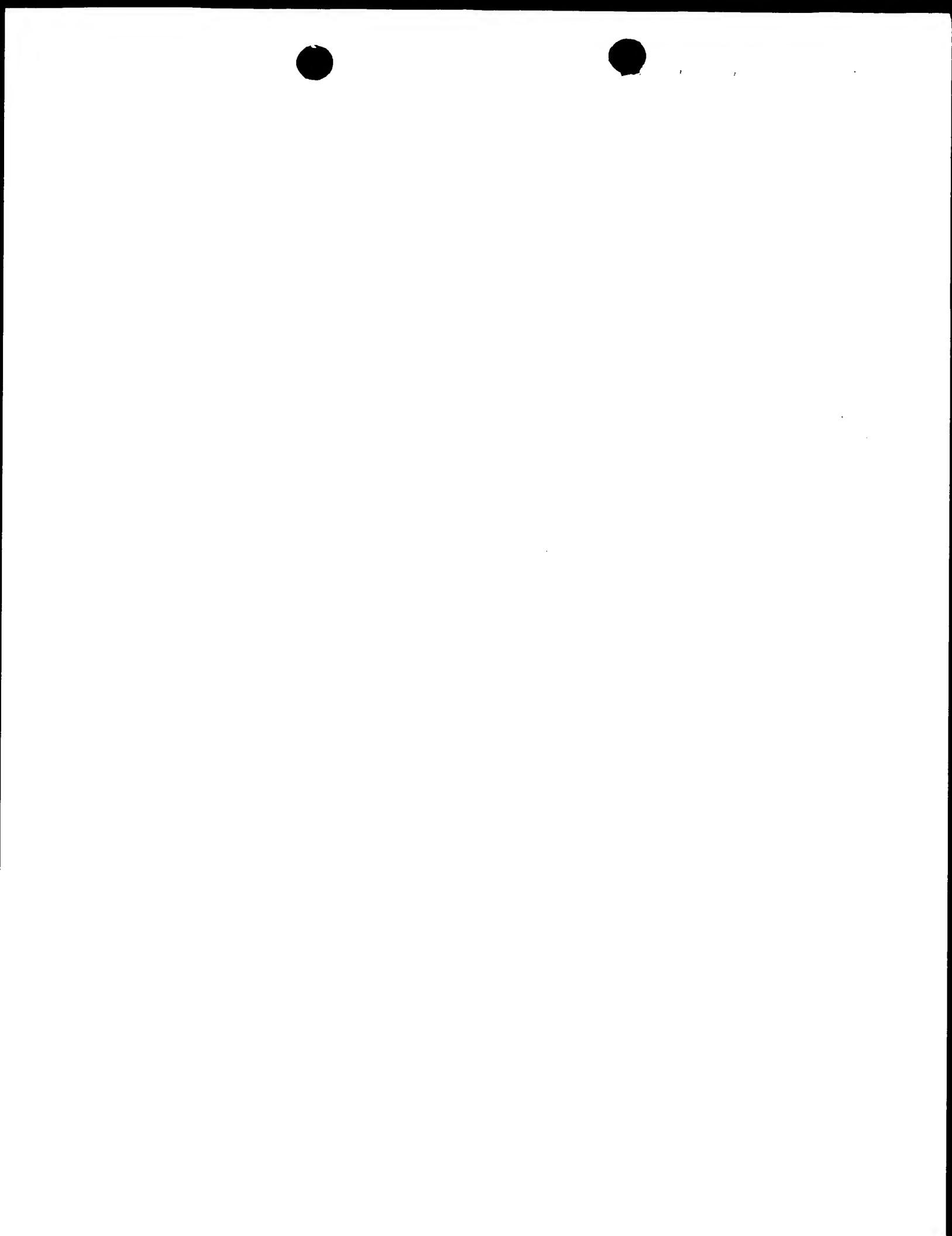
Il est à noter que seul un déposant qui est ressortissant d'un Etat contractant du PCT lié par le chapitre II ou qui y a son domicile peut présenter une demande d'examen préliminaire international.

## RAPPEL CONCERNANT L'OUVERTURE DE LA PHASE NATIONALE (article 22 ou 39.1))

Si le déposant souhaite que la demande internationale procède en phase nationale, il doit, dans le délai de 20 mois ou de 30 mois, ou plus pour ce qui concerne certains offices, accomplir les actes mentionnés dans ces dispositions auprès de chaque office désigné ou élu.

Pour d'autres informations importantes concernant les délais et les actes à accomplir pour l'ouverture de la phase nationale, voir l'annexe du formulaire PCT/IB/301 (Notification de la réception de l'exemplaire original) et le volume II du Guide du déposant du PCT.

Bureau international de l'OMPI 34, chemin des Colombettes 1211 Genève 20, Suisse  no de télecopieur (41-22) 740.14.35	Fonctionnaire autorisé  J. Zahra  no de téléphone (41-22) 338.83.38
---	---



# TRAITE DE OPERATION EN MATIERE DE BREVETS

PCT

## INFORMATIONS RELATIVES AUX OFFICES ELUS QUI ONT RECU NOTIFICATION DE LEUR ELECTION

(règle 61.3 du PCT)

Date d'expédition (jour/mois/année) 08 avril 1999 (08.04.99)
---

Expéditeur: le BUREAU INTERNATIONAL

Destinataire:

ESSON, Jean-Pierre  
Rhodia Services  
Direction de la Propriété  
Industrielle  
Crit-Carrières  
Boîte postale 62  
F-69192 Saint-Fons Cedex  
FRANCE

13 AVR 1999

Référence du dossier du déposant ou du mandataire R 97076
--

## INFORMATION IMPORTANTE

Demande internationale n° PCT/EP98/03858	Date du dépôt international (jour/mois/année) 24 juin 1998 (24.06.98)	Date de priorité (jour/mois/année) 17 juillet 1997 (17.07.97)
Déposant NYLTECH ITALIA etc		

1. Le déposant est informé que le Bureau international a, conformément à l'article 31.7), notifié à chacun des offices suivants son élection:

AP :GH,GM,KE,LS,MW,SD,SZ,UG,ZW

EP :AT,BE,CH,CY,DE,DK,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE

National :AU,BG,BR,CA,CN,CZ,DE,GB,IL,JP,KP,KR,MN,NO,NZ,PL,RO,RU,SE,SK,US,

VN

2. Les offices suivants ont renoncé à l'exigence selon laquelle ils sont notifiés de leur élection; la notification de leur élection leur sera envoyée par le Bureau international seulement à leur demande:

EA :AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM

OA :BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,ML,MR,NE,SN,TD,TG

National :AL,AM,AT,AZ,BA,BB,BY,CH,CU,DK,EE,ES,FI,GE,HU,IS,KE,KG,KZ,LC,LK,

LR,LS,LT,LU,LV,MD,MG,MK,MW,MX,PT,SD,SG,SI,TJ,TM,TR,TT,UA,UG,UZ

3. Il est rappelé au déposant qu'il doit aborder la "phase nationale" auprès de chacun des offices mentionnés ci-dessus **avant l'expiration d'un délai de 30 mois à compter de la date de priorité**. Pour ce faire, il doit payer la ou les taxes nationales et remettre, si elle est prescrite, une traduction de la demande internationale (article 39.1)a) ainsi que, le cas échéant, une traduction de toute annexe du rapport d'examen préliminaire international (article 36.3)b) et règle 74.1).

Certains offices ont fixé des délais supérieurs au délai mentionné ci-dessus. Pour des renseignements détaillés au sujet des délais applicables et des actes à accomplir à l'ouverture de la phase nationale auprès d'un office donné, voir le volume II du Guide du déposant du PCT.

L'ouverture de la phase régionale européenne est différée jusqu'à l'**expiration d'un délai de 31 mois à compter de la date de priorité pour la totalité des Etats désignés aux fins de l'obtention d'un brevet européen.**

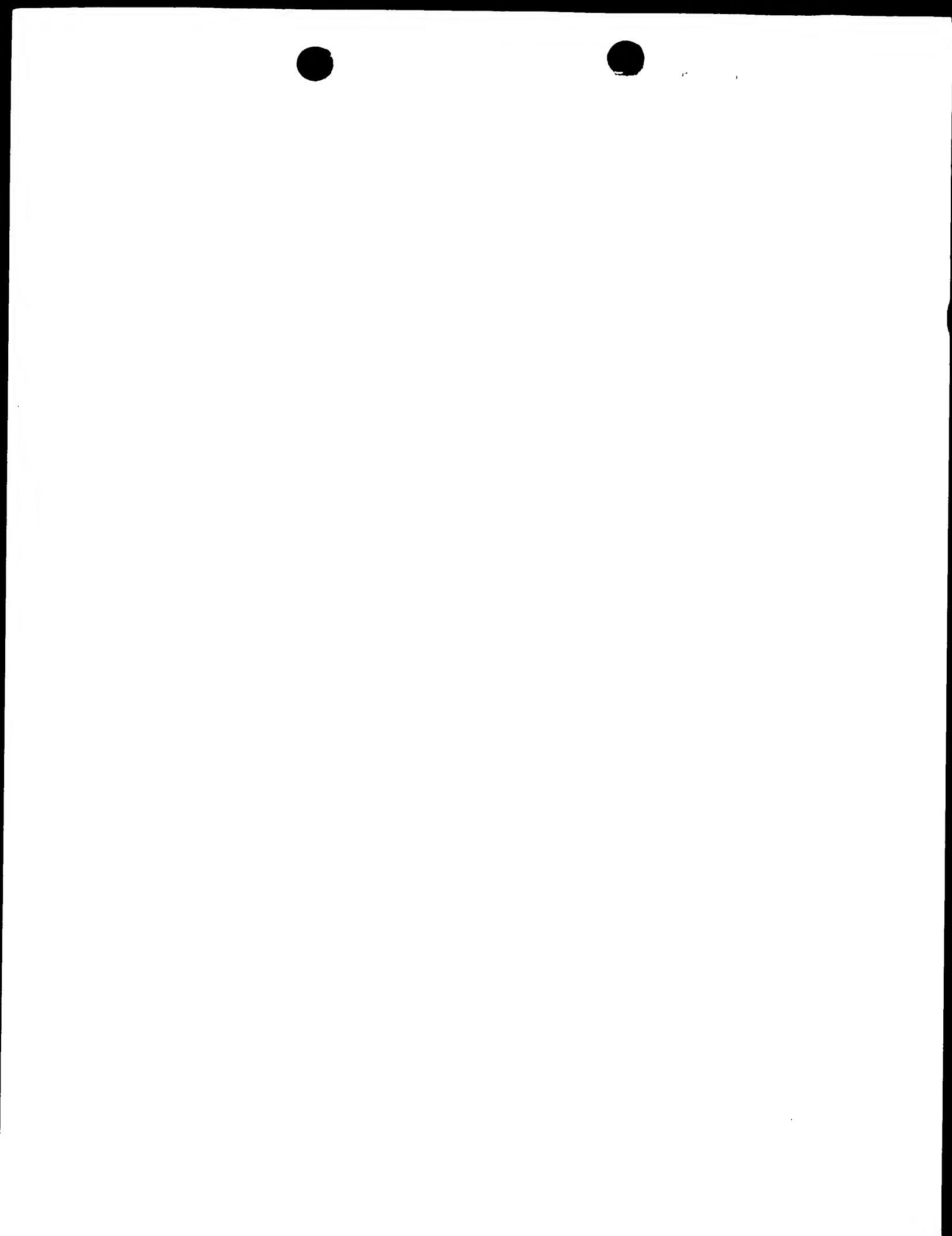
Bureau international de l'OMPI  
34, chemin des Colombettes  
1211 Genève 20, Suisse

no de télecopieur (41-22) 740.14.35

Fonctionnaire autorisé:

Jean-Marie McAdams

no de téléphone (41-22) 338.83.38



*B31*

# TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

**PCT**

## RAPPORT D'EXAMEN PRELIMINAIRE INTERNATIONAL

(article 36 et règle 70 du PCT)

REC'D 28 OCT 1999

WIPO

PCT

Référence du dossier du déposant ou du mandataire R 97076	<b>POUR SUITE A DONNER</b> voir la notification de transmission du rapport d'examen préliminaire international (formulaire PCT/IPEA/416)	
Demande internationale n° PCT/EP98/03858	Date du dépôt international ( <i>jour/mois/année</i> ) 24/06/1998	Date de priorité ( <i>jour/mois/année</i> ) 17/07/1997
Classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois classification nationale et CIB C08G69/00		
Déposant NYLTECH ITALIA et al.		
<p>1. Le présent rapport d'examen préliminaire international, établi par l'administration chargée de l'examen préliminaire international, est transmis au déposant conformément à l'article 36.</p> <p>2. Ce RAPPORT comprend 6 feuilles, y compris la présente feuille de couverture.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Il est accompagné d'ANNEXES, c'est-à-dire de feuilles de la description, des revendications ou des dessins qui ont été modifiées et qui servent de base au présent rapport ou de feuilles contenant des rectifications faites auprès de l'administration chargée de l'examen préliminaire international (voir la règle 70.16 et l'instruction 607 des Instructions administratives du PCT).</p> <p>Ces annexes comprennent 3 feuilles.</p>		
<p>3. Le présent rapport contient des indications relatives aux points suivants:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>I    <input checked="" type="checkbox"/> Base du rapport</li> <li>II   <input type="checkbox"/> Priorité</li> <li>III   <input type="checkbox"/> Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle</li> <li>IV   <input type="checkbox"/> Absence d'unité de l'invention</li> <li>V    <input checked="" type="checkbox"/> Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration</li> <li>VI   <input type="checkbox"/> Certains documents cités</li> <li>VII   <input type="checkbox"/> Irrégularités dans la demande internationale</li> <li>VIII   <input checked="" type="checkbox"/> Observations relatives à la demande internationale</li> </ul>		

Date de présentation de la demande d'examen préliminaire internationale  04/02/1999	Date d'achèvement du présent rapport  26.10.99
Nom et adresse postale de l'administration chargée de l'examen préliminaire international:   Office européen des brevets D-80298 Munich Tél. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Fonctionnaire autorisé  Idez, C  N° de téléphone +49 89 2399 8665





## **RAPPORT D'EXAMEN PRELIMINAIRE INTERNATIONAL**

Demande internationale n° PCT/EP98/03858

## I. Base du rapport

1. Ce rapport a été rédigé sur la base des éléments ci-après (*les feuilles de remplacement qui ont été remises à l'office récepteur en réponse à une invitation faite conformément à l'article 14 sont considérées, dans le présent rapport, comme "initialement déposées" et ne sont pas jointes en annexe au rapport puisqu'elles ne contiennent pas de modifications.*) :

**Description, pages:**

1-8 version initiale

### **Revendicaciones. N°:**

1-11 recue(s) le 04/06/1999 avec la lettre du 02/06/1999

### Dessins feuilles:

1/3 3/3 version initiale

- ## 2 Les modifications ont entraîné l'annulation :

- de la description,      pages :
  - des revendications, n°s :
  - des dessins,          feuilles :

3.  Le présent rapport a été formulé abstraction faite (de certaines) des modifications, qui ont été considérées comme allant au-delà de l'exposé de l'invention tel qu'il a été déposé, comme il est indiqué ci-après (règle 70.2(c)) :

- #### 4. Observations complémentaires, le cas échéant :



**RAPPORT D'EXAMEN  
PRELIMINAIRE INTERNATIONAL**

Demande internationale n° PCT/EP98/03858

**V. Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration**

**1. Déclaration**

Nouveauté	Oui : Revendications 2-5, 10 Non : Revendications 1, 6-9, 11
Activité inventive	Oui : Revendications Non : Revendications 2-5, 10
Possibilité d'application industrielle	Oui : Revendications 1-11 Non : Revendications

**2. Citations et explications**

**voir feuille séparée**

**VIII. Observations relatives à la demande internationale**

Les observations suivantes sont faites au sujet de la clarté des revendications, de la description et des dessins et de la question de savoir si les revendications se fondent entièrement sur la description :

**voir feuille séparée**



1) Concernant le point V:

1.1) Les documents suivants sont cités dans cette notification:

D1 = WO-A-93/09162

D2 = EP-A-360062

D3 = FR-A-2015983

D4 = EP-A-345648

1.2) D2 décrit des polyamides branchés obtenus par addition de lysine ( c.a.d. un composé ayant 2 fonctions amine et une fonction acide) en une quantité de l'ordre de 0,1 à 2% en poids au mélange des monomères bifonctionnels tels que diacides, diamines , aminoacides ou lactames. Du fait de l'utilisation de cet agent de branchement les polyamides obtenus possèdent une viscosité plus adaptée à la transformation par extrusion soufflage ( voir D2, revendications 1-3; exemples 1-3; page 1, lignes 35-50; page 3, lignes 39-page 4, ligne 50; page 5, lignes 20-23; lignes 40-46). L'argumentation de la demanderesse selon laquelle la présente revendication 1 n'englobe pas des composés trifonctionnels ayant 2 fonctions amine et une fonction acide ( comme par exemple la lysine) ne semble pertinente puisqu' il est clairement indiqué que B peut être un groupe amine ( voir revendication 1 "B représente un groupe amine quand A représente un groupe acide" ; "n est un nombre entier au moins égal à 2" ).

D2 est donc considéré comme détruisant la nouveauté des revendications 1, 6-9, 11. (Art.33(2)).

1.3) D1 décrit des polyamides aromatiques branchés obtenus par réaction de diacides aminés aromatiques ( par exemple l'acide 5-amino-isophthalique) ou de diamines aromatiques ayant un groupe acide carboxylique avec un aminoacide tel que l' acide aminobenzoïque (voir D1, revendications 1, 3, 5, 6). Puisque la quantité de monomère multifonctionnel utilisé dans les copolyamides selon la présente revendication 1 de la présente demande a été maintenant limitée entre 0,01% et 5%



**RAPPORT D'EXAMEN  
PRELIMINAIRE INTERNATIONAL - FEUILLE SEPARÉE**

Demande internationale n° PCT/EP98/03858

en mole, D1 n'est plus considéré comme destructeur de nouveauté.

1.4) L'objet des revendications 2-5, 10 est donc considéré comme nouveau par rapport à D1 et D2. (Art.33(2)).

1.5) Il convient également de noter que l'utilisation de composés trifonctionnels (par exemple triamines ou acides tricarboxyliques) en association avec des composés monofonctionnels pour modifier la viscosité de polyamides est également connue de D3 et D4 (voir D3, revendications, tableau 1, figure 1; voir D4, page 2, lignes 1-13; page 3, lignes 9-25; revendication 1).

1.6) La demanderesse s'est fixé pour but l'obtention de polyamides thermoplastiques présentant une viscosité élevée en milieu fondu et ayant de bonnes propriétés mécaniques.

Dans la mesure où la modification de la viscosité de polyamides thermoplastiques par utilisation de monomères au moins trifonctionnels est connue de l'art antérieur (voir D2, D3 et D4), une activité inventive n'aurait pu être reconnue que si la demanderesse avait démontré à l'aide d'essais comparatifs que le choix de monomères au moins trifonctionnels spécifiques conduisait à des propriétés inattendues pour les polyamides ainsi modifiés.

En l'absence de telles données une activité inventive ne peut être reconnue pour l'objet des revendications 2-5 et 10. (Art.33(3)).

2) Concernant le point VIII:

2.1) La présente description ne contient aucune référence à un art antérieur. La demanderesse a l'obligation de citer l'art antérieur pertinent dont elle a connaissance. (Règle 5.1 a.ii) .

2.2) La revendication 4 n'a pas de support adéquat dans la description (c.a.d l'utilisation de l'acide 5-amino-isophthalique est uniquement mentionnée dans les exemples). (Art.6).

2.3) La revendication 8 n'a pas de support clair dans la description. (Art.6).



2.4) La méthode de calcul du coefficient de distribution D devrait être indiquée dans la revendication 7. (Art.6).

2.5) La description n'est pas adaptée aux nouvelles revendications. (Art.6)



## REVENDICATIONS

1 - Copolyamide thermoplastique caractérisé en ce qu'il résulte de la réaction entre au moins un monomère multifonctionnel répondant à la formule générale I suivante :

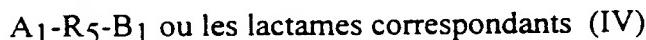
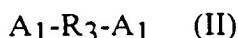


dans laquelle :

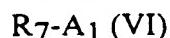
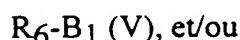
- n est un nombre entier supérieur ou égal à 2, de préférence compris entre 2 et 10 (bornes incluses)
- R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> peuvent être identiques ou différents et représentent une liaison covalente, un radical hydrocarboné aliphatique, arylaliphatique, aromatique ou alkylaromatique
- R est un radical aliphatique linéaire ou ramifié, un radical cycloaliphatique substitué ou non, un radical aromatique substitué ou non pouvant comprendre plusieurs noyaux aromatiques et/ou des hétéroatomes, une chaîne polymérique pouvant contenir des hétéroatomes,
- A représente la fonction amine ou sel et amine, ou la fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide
- B représente la fonction amine ou sel d'amine quand A représente une fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide, et une fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide quand A représente une fonction amine ou sel d'amine,

et, au moins un des monomères bifonctionnels de formules II à IV suivantes avec éventuellement des monomères monofonctionnels de formule V ou VI suivantes, ou avec un prépolymère obtenu à partir d'au moins un monomère bifonctionnel de formules II à IV suivantes et, éventuellement au moins un monomère monofonctionnel de formules V ou VI suivantes,

- les monomères bifonctionnels répondant aux formules générales suivantes:



- les monomères monofonctionnels répondant aux formules générales suivantes :



dans lesquelles :

- A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub> représentent respectivement une fonction acide, ester ou chlorure d'acide, et une fonction amine, ou un sel d'amine.

{

- R<sub>3</sub>, R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub>, R<sub>6</sub>, R<sub>7</sub> représentent des radicaux hydrocarbonés alkyles linéaires ou ramifiés, aromatiques substitués ou non alkylaryles, arylalkyles ou cycloaliphatiques pouvant comprendre des insaturations,
- le rapport molaire entre les monomères multifonctionnels de formule I et la somme des monomères difonctionnels de formule II, III, IV et monofonctionnels de formules V et VI étant compris entre 0,01 % et 5 %, de préférence entre 0,05 % et 1 %.

2 - Copolyamide selon la revendication 1, caractérisé en ce que le radical R est un radical aromatique.

10

3 - Copolyamide selon l'une des revendications 1 à 2, caractérisé en ce que le monomère de formule I est un composé dans lequel A représente la fonction amine, B la fonction acide, n est égal à 2 et R représente un radical aromatique, R<sub>1</sub> et R<sub>2</sub> représentent une liaison covalente.

15

4 - Copolyamide selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que le monomère de formule I est l'acide 5-amino-isophthalique.

20

5 - Copolyamide selon l'une des revendications 1, caractérisé en ce que le monomère de formule I est l'acide 6-amino-undécandoïque.

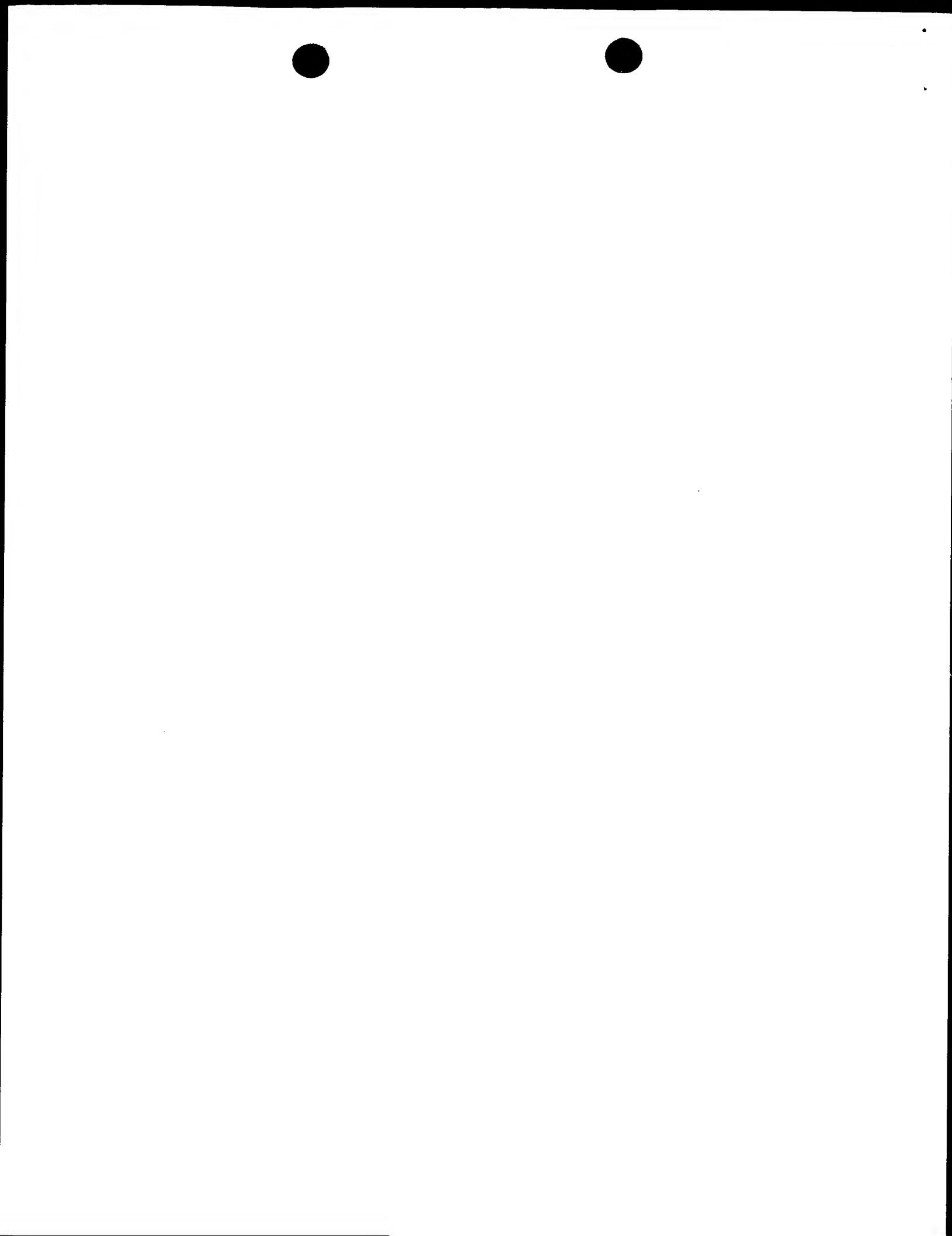
6 - Copolyamide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il présente un indice de fluidité (MFI) en milieu fondu inférieur à 5 g/10 min (mesuré à 275°C sous une charge de 2160 g).

25

7. Copolyamide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il présente un indice de distribution D des masses moléculaires supérieur à 2.

30

8 - Procédé de fabrication d'un copolyamide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il consiste à ajouter dans la masse réactionnelle contenant des monomères bifonctionnels de formules II à IV et, éventuellement des monomères monofonctionnels de formules V ou VI, conduisant à un polyamide linéaire, une quantité déterminée d'un monomère plurifonctionnel de formule I, puis à réaliser la polycondensation dans les conditions de température et pression utilisées pour la polymérisation dudit polyamide linéaire.



9 - Procédé de fabrication d'un copolyamide selon l'une des revendications 1 à 7, caractérisé en ce qu'il consiste à synthétiser un prépolymère d'un polyamide linéaire à partir de monomère(s) de formules II à IV et, éventuellement des monomères monofonctionnels de formule V ou VI, à ajouter à cedit prépolymère en milieu solide ou 5 fondu une quantité déterminée de monomère polyfonctionnel, puis à faire réagir ledit monomère polyfonctionnel et ledit prépolymère soit en phase solide soit en phase fondue.

10 - Procédé selon la revendication 9, caractérisé en ce qu'un catalyseur 10 d'amidification ou de polycondensation est ajouté avec le monomère polyfonctionnel.

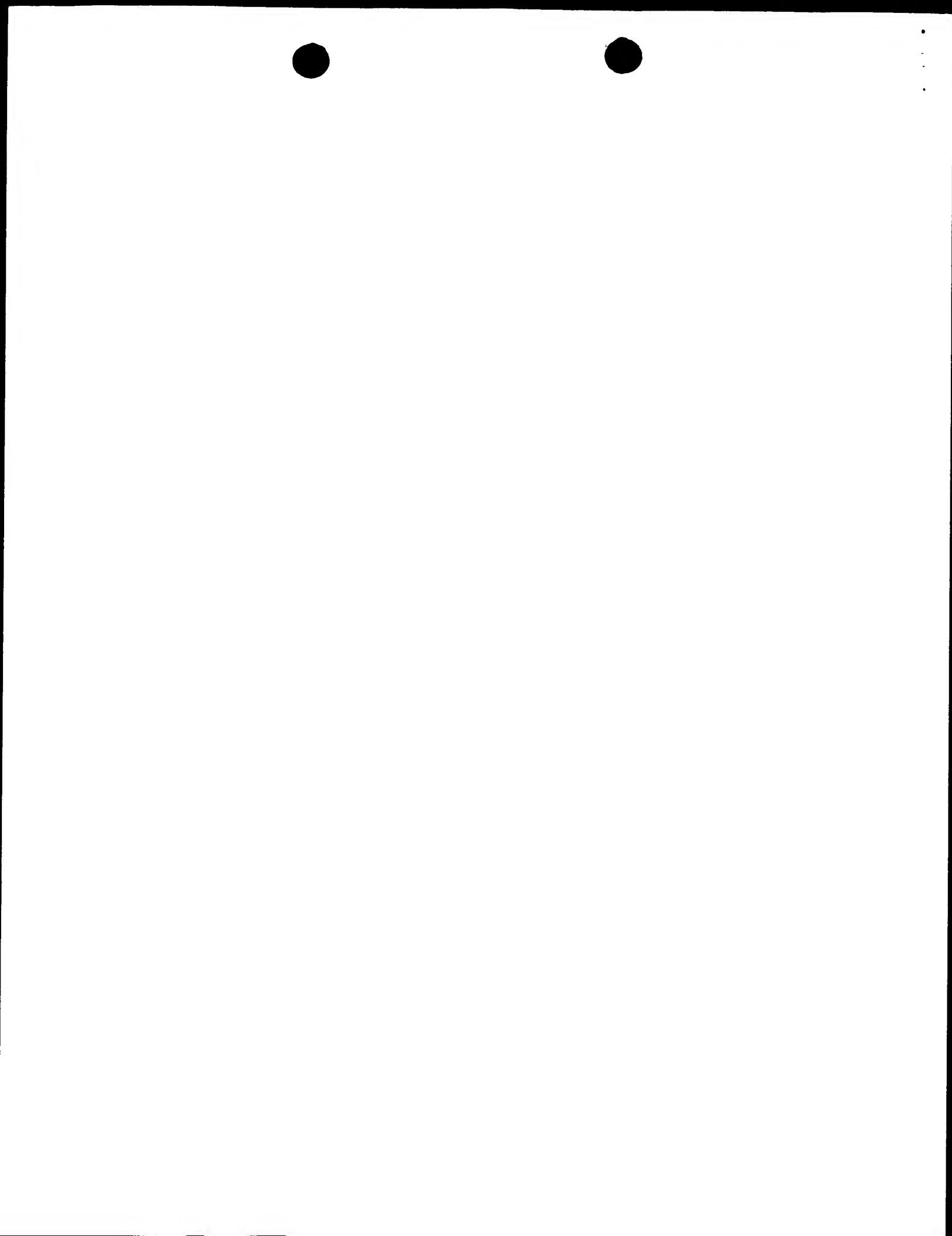
11 - Composition comprenant comme matrice au moins un copolyamide selon l'une des revendications 1 à 7 et d'autres composants choisis dans le groupe comprenant des charges de renfort, des charges de remplissage, des additifs antioxydants, de 15 stabilisation, des pigments, des colorants, des ignifugeants, des additifs d'aide au moulage.

20

25

30

35



# TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

Expéditeur: L'ADMINISTRATION CHARGEÉE DE  
L'EXAMEN PRÉLIMINAIRE INTERNATIONAL

Destinataire:

ESSON, Jean-Pierre  
RHODIA SERVICES  
Direction Propriété Industrielle  
CRIT-CARRIERES BP 62  
F-69192 Saint-Fons Cedex  
FRANCE

28 OCT 1999

PCT

## NOTIFICATION DE TRANSMISSION DU RAPPORT D'EXAMEN PRÉLIMINAIRE INTERNATIONAL

(règle 71.1 du PCT)

Date d'expédition  
(jour/mois/année)

**26. 10. 99**

Référence du dossier du déposant ou du mandataire  
**R 97076**

### NOTIFICATION IMPORTANTE

Demande internationale No. <b>PCT/EP98/03858</b>	Date du dépôt international (jour/mois/année) <b>24/06/1998</b>	Date de priorité (jour/mois/année) <b>17/07/1997</b>
---	--	---

Déposant  
**NYLTECH ITALIA et al.**

1. Il est notifié au déposant que l'administration chargée de l'examen préliminaire international a établi le rapport d'examen préliminaire international pour la demande internationale et le lui transmet ci-joint, accompagné, le cas échéant, de ces annexes.
2. Une copie du présent rapport et, le cas échéant, de ses annexes est transmise au Bureau international pour communication à tous les offices élus.
3. Si tel ou tel office élu l'exige, le Bureau international établira une traduction en langue anglaise du rapport (à l'exclusion des annexes de celui-ci) et la transmettra aux offices intéressés.

#### 4. RAPPEL

Pour aborder la phase nationale auprès de chaque office élu, le déposant doit accomplir certains actes (dépôt de traduction et paiement des taxes nationales) dans le délai de 30 mois à compter de la date de priorité (ou plus tard pour ce qui concerne certains offices) (article 39.1) (voir aussi le rappel envoyé par le Bureau international dans le formulaire PCT/IB/301).

Lorsqu'une traduction de la demande internationale doit être remise à un office élu, elle doit comporter la traduction de toute annexe du rapport d'examen préliminaire international. Il appartient au déposant d'établir la traduction en question et de la remettre directement à chaque office élu intéressé.

Pour plus de précisions en ce qui concerne les délais applicables et les exigences des offices élus, voir le Volume II du Guide du déposant du PCT.

Nom et adresse postale de l'administration chargée de l'examen préliminaire international

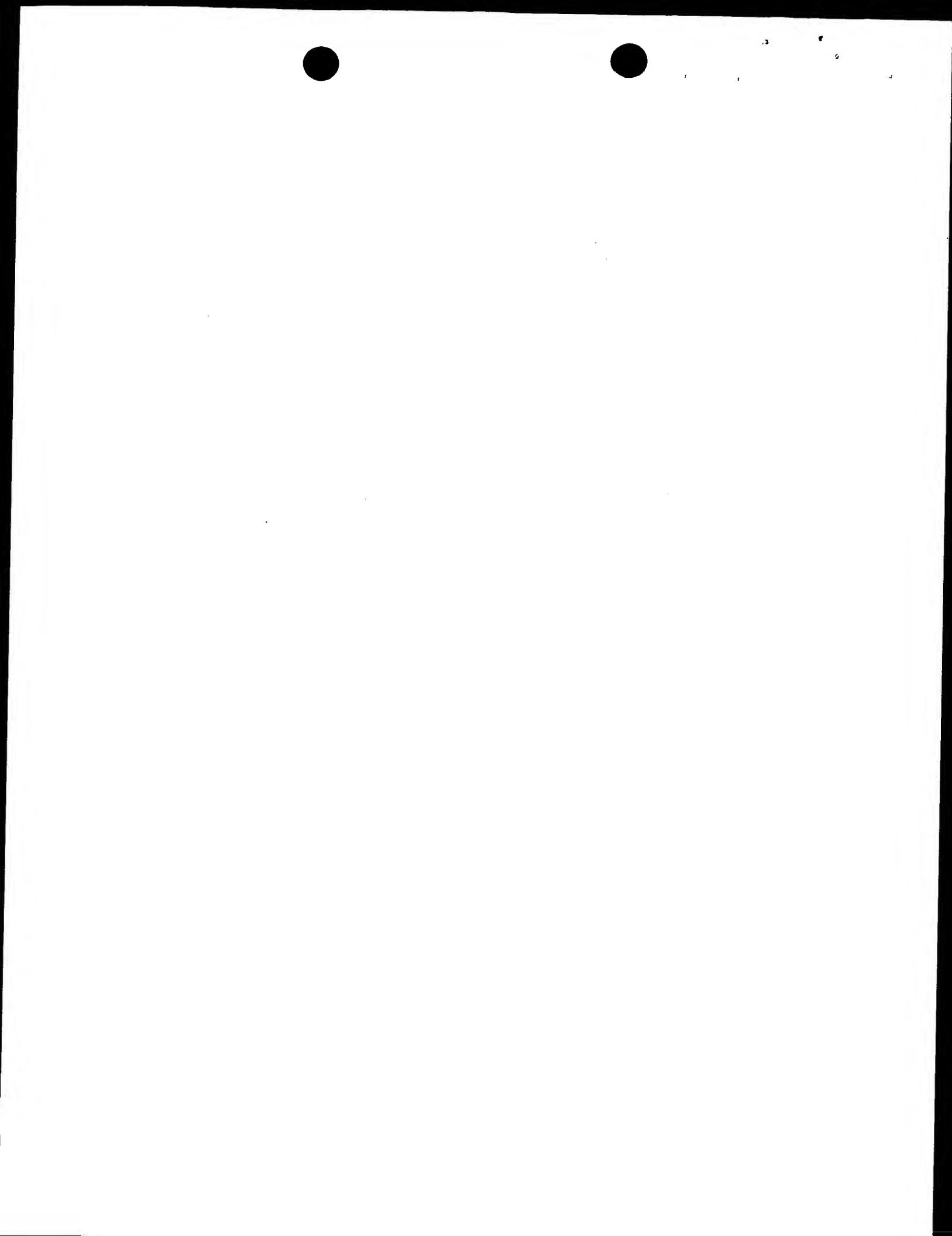
Office européen des brevets  
D-80298 Munich  
Tél. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d  
Fax: +49 89 2399 - 4465

Fonctionnaire autorisé

Aperribay, I

Tél. +49 89 2399-8154





# TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS

## PCT

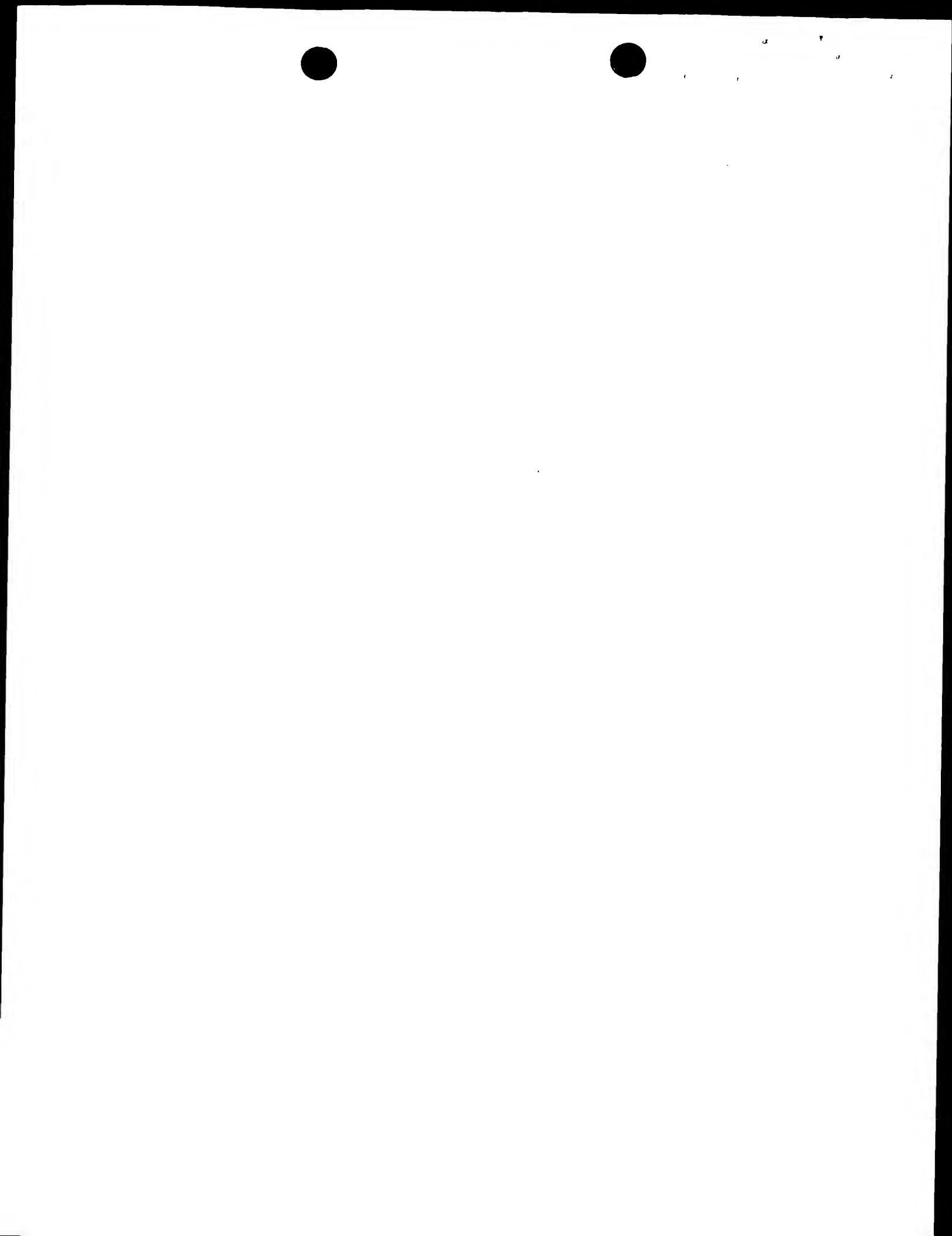
### RAPPORT D'EXAMEN PRELIMINAIRE INTERNATIONAL

(article 36 et règle 70 du PCT)

Référence du dossier du déposant ou du mandataire R 97076	<b>POUR SUITE A DONNER</b>	voir la notification de transmission du rapport d'examen préliminaire international (formulaire PCT/IPEA/416)
Demande internationale n° PCT/EP98/03858	Date du dépôt international ( <i>jour/mois/année</i> ) 24/06/1998	Date de priorité ( <i>jour/mois/année</i> ) 17/07/1997
Classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois classification nationale et CIB C08G69/00		
Déposant NYLTECH ITALIA et al.		
<p>1. Le présent rapport d'examen préliminaire international, établi par l'administration chargée de l'examen préliminaire international, est transmis au déposant conformément à l'article 36.</p> <p>2. Ce RAPPORT comprend 6 feuilles, y compris la présente feuille de couverture.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Il est accompagné d'ANNEXES, c'est-à-dire de feuilles de la description, des revendications ou des dessins qui ont été modifiées et qui servent de base au présent rapport ou de feuilles contenant des rectifications faites auprès de l'administration chargée de l'examen préliminaire international (voir la règle 70.16 et l'instruction 607 des Instructions administratives du PCT).</p> <p>Ces annexes comprennent 3 feuilles.</p> <p>3. Le présent rapport contient des indications relatives aux points suivants:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>I    <input checked="" type="checkbox"/> Base du rapport</li> <li>II    <input type="checkbox"/> Priorité</li> <li>III    <input type="checkbox"/> Absence de formulation d'opinion quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle</li> <li>IV    <input type="checkbox"/> Absence d'unité de l'invention</li> <li>V    <input checked="" type="checkbox"/> Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration</li> <li>VI    <input type="checkbox"/> Certains documents cités</li> <li>VII    <input type="checkbox"/> Irrégularités dans la demande internationale</li> <li>VIII    <input checked="" type="checkbox"/> Observations relatives à la demande internationale</li> </ul>		

Date de présentation de la demande d'examen préliminaire internationale 04/02/1999	Date d'achèvement du présent rapport <b>26.10.99</b>
Nom et adresse postale de l'administration chargée de l'examen préliminaire international: Office européen des brevets D-80298 Munich Tél. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Fonctionnaire autorisé Idez, C N° de téléphone +49 89 2399 8665





## RAPPORT D'EXAMEN PRELIMINAIRE INTERNATIONAL

Demande internationale n° PCT/EP98/03858

## I. Base du rapport

1. Ce rapport a été rédigé sur la base des éléments ci-après (*les feuilles de remplacement qui ont été remises à l'office récepteur en réponse à une invitation faite conformément à l'article 14 sont considérées, dans le présent rapport, comme "initialement déposées" et ne sont pas jointes en annexe au rapport puisqu'elles ne contiennent pas de modifications.*) :

**Description, pages:**

1-8 version initiale

#### **Revendications, N°:**

1-11 recue(s) le 04/06/1999 avec la lettre du 02/06/1999

### Dessins, feuilles:

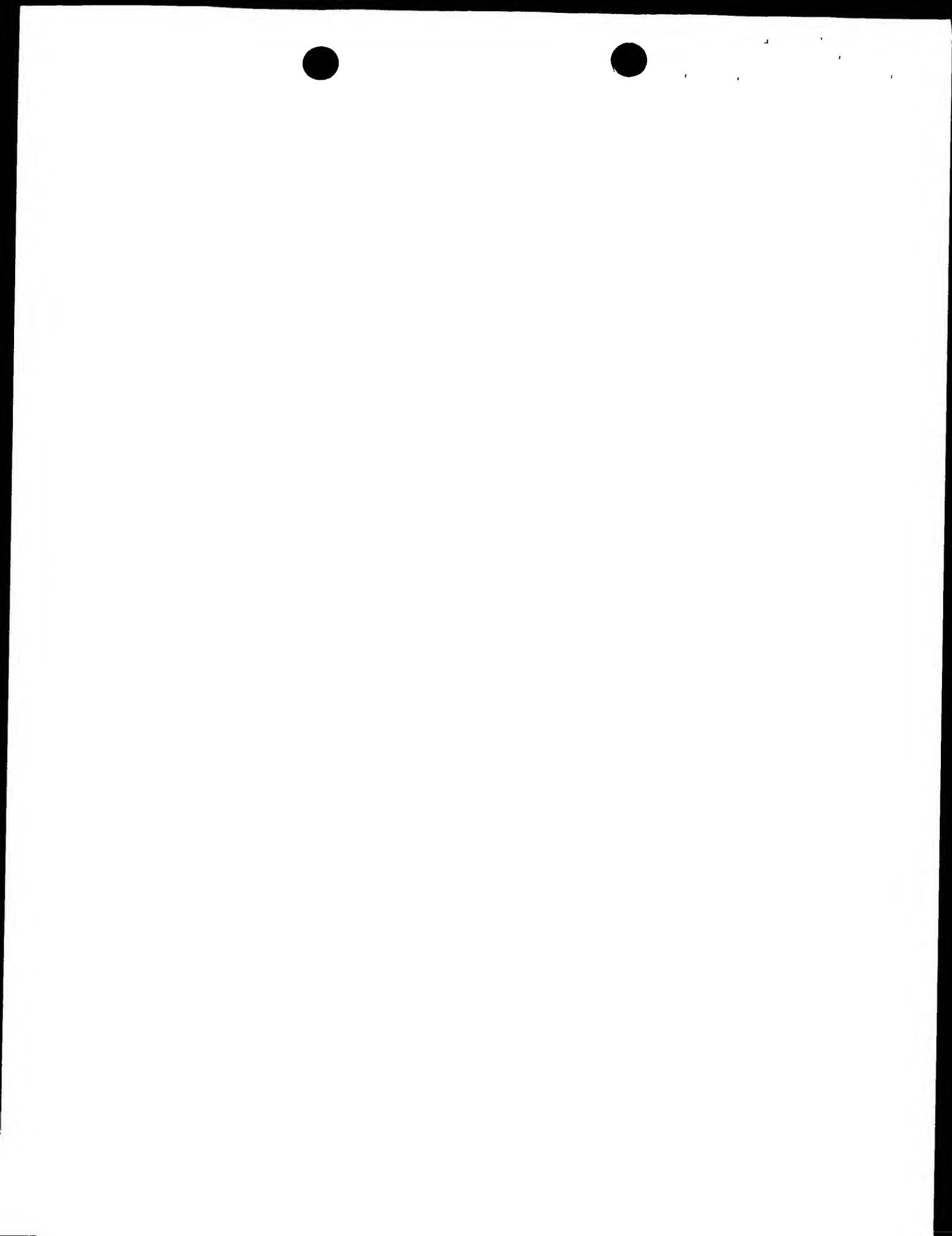
1/2 2/2 version initiale

- ## 2. Les modifications ont entraîné l'annulation :

- de la description, pages :
  - des revendications, n°s :
  - des dessins, feuilles :

3.  Le présent rapport a été formulé abstraction faite (de certaines) des modifications, qui ont été considérées comme allant au-delà de l'exposé de l'invention tel qu'il a été déposé, comme il est indiqué ci-après (règle 70.2(c)) :

- #### 4 Observations complémentaires, le cas échéant :



**RAPPORT D'EXAMEN  
PRELIMINAIRE INTERNATIONAL**

Demande internationale n° PCT/EP98/03858

**V. Déclaration motivée selon l'article 35(2) quant à la nouveauté, l'activité inventive et la possibilité d'application industrielle; citations et explications à l'appui de cette déclaration**

**1. Déclaration**

Nouveauté	Oui : Revendications 2-5, 10 Non : Revendications 1, 6-9, 11
Activité inventive	Oui : Revendications Non : Revendications 2-5, 10
Possibilité d'application industrielle	Oui : Revendications 1-11 Non : Revendications

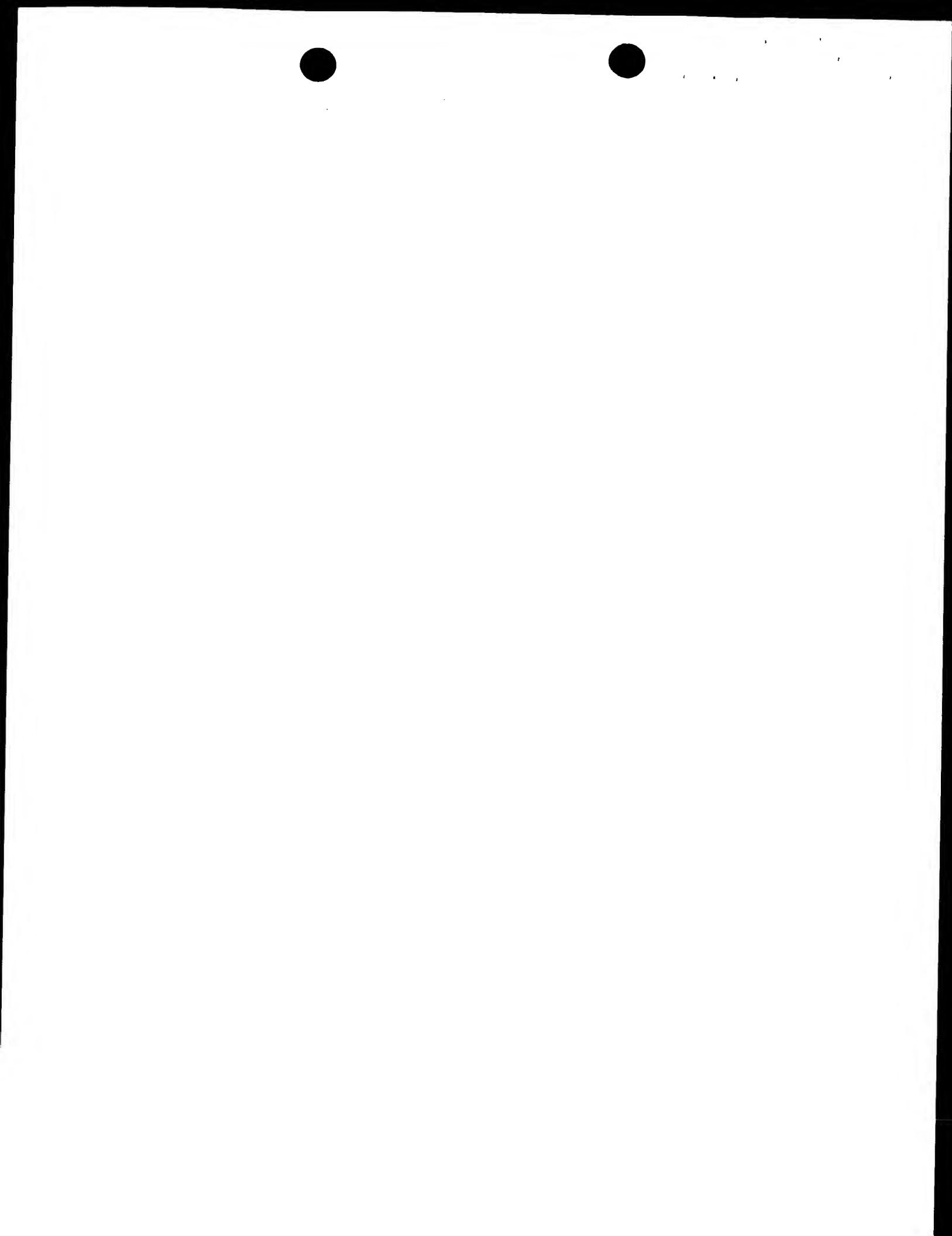
**2. Citations et explications**

**voir feuille séparée**

**VIII. Observations relatives à la demande internationale**

Les observations suivantes sont faites au sujet de la clarté des revendications, de la description et des dessins et de la question de savoir si les revendications se fondent entièrement sur la description :

**voir feuille séparée**



1) Concernant le point V:

1.1) Les documents suivants sont cités dans cette notification:

D1 = WO-A-93/09162

D2 = EP-A-360062

D3 = FR-A-2015983

D4 = EP-A-345648

1.2) D2 décrit des polyamides branchés obtenus par addition de lysine ( c.a.d. un composé ayant 2 fonctions amine et une fonction acide) en une quantité de l'ordre de 0,1 à 2% en poids au mélange des monomères bifonctionnels tels que diacides, diamines , aminoacides ou lactames. Du fait de l'utilisation de cet agent de branchement les polyamides obtenus possèdent une viscosité plus adaptée à la transformation par extrusion soufflage ( voir D2, revendications 1-3; exemples 1-3; page 1, lignes 35-50; page 3, lignes 39-page 4, ligne 50; page 5, lignes 20-23; lignes 40-46). L'argumentation de la demanderesse selon laquelle la présente revendication 1 n'englobe pas des composés trifonctionnels ayant 2 fonctions amine et une fonction acide ( comme par exemple la lysine) ne semble pertinente puisqu' il est clairement indiqué que B peut être un groupe amine ( voir revendication 1 "B représente un groupe amine quand A représente un groupe acide" ; "n est un nombre entier au moins égal à 2" ).

D2 est donc considéré comme détruisant la nouveauté des revendications 1, 6-9, 11. (Art.33(2)).

1.3) D1 décrit des polyamides aromatiques branchés obtenus par réaction de diacides aminés aromatiques ( par exemple l'acide 5-amino-isophthalique) ou de diamines aromatiques ayant un groupe acide carboxylique avec un aminoacide tel que l' acide aminobenzoïque (voir D1, revendications 1, 3, 5, 6). Puisque la quantité de monomère multifonctionnel utilisé dans les copolyamides selon la présente revendication 1 de la présente demande a été maintenant limitée entre 0,01% et 5%



en mole, D1 n'est plus considéré comme destructeur de nouveauté.

1.4) L'objet des revendications 2-5, 10 est donc considéré comme nouveau par rapport à D1 et D2. (Art.33(2)).

1.5) Il convient également de noter que l'utilisation de composés trifonctionnels ( par exemple triamines ou acides tricarboxyliques) en association avec des composés monofonctionnels pour modifier la viscosité de polyamides est également connue de D3 et D4 ( voir D3, revendications, tableau 1, figure 1; voir D4, page 2, lignes 1-13; page 3, lignes 9-25; revendication 1).

1.6) La demanderesse s'est fixé pour but l'obtention de polyamides thermoplastiques présentant une viscosité élevée en milieu fondu et ayant de bonnes propriétés mécaniques.

Dans la mesure où la modification de la viscosité de polyamides thermoplastiques par utilisation de monomères au moins trifonctionnels est connue de l'art antérieur ( voir D2, D3 et D4), une activité inventive n' aurait pu être reconnue que si la demanderesse avait démontré à l'aide d'essais comparatifs que le choix de monomères au moins trifonctionnels spécifiques conduisait à des propriétés inattendues pour les polyamides ainsi modifiés.

En l'absence de telles données une activité inventive ne peut être reconnue pour l'objet des revendications 2-5 et 10. (Art.33(3)).

2) Concernant le point VIII:

2.1) La présente description ne contient aucune référence à un art antérieur. La demanderesse a l' obligation de citer l' art antérieur pertinent dont elle a connaissance. (Règle 5.1 a.ii) .

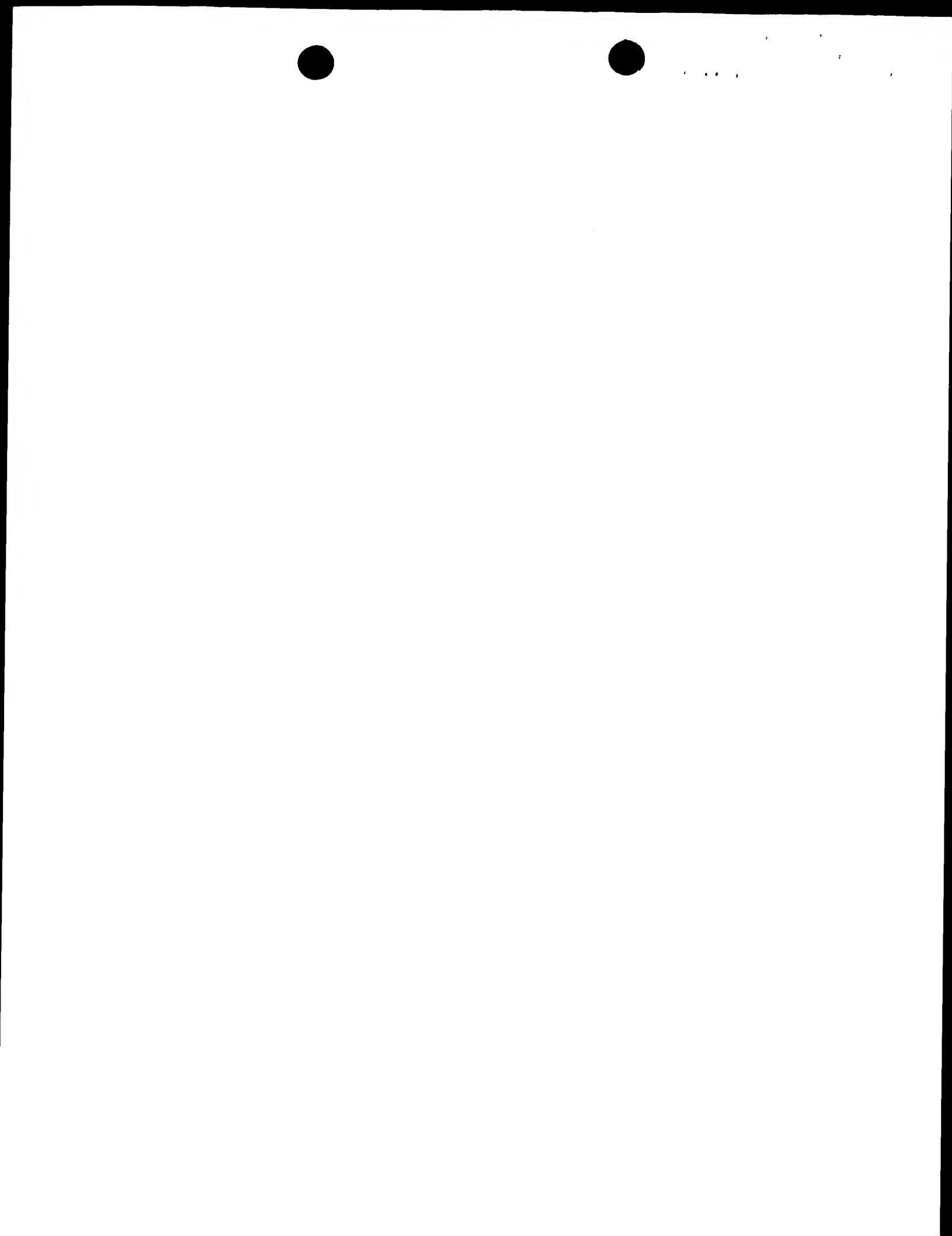
2.2) La revendication 4 n' a pas de support adéquat dans la description ( c.a.d l' utilisation de l'acide 5-amino-isophthalique est uniquement mentionnée dans les exemples). (Art.6).

2.3) La revendication 8 n' a pas de support clair dans la description. (Art.6).



2.4) La méthode de calcul du coefficient de distribution D devrait être indiquée dans la revendication 7. (Art.6).

2.5) La description n'est pas adaptée aux nouvelles revendications. (Art.6)



## REVENDICATIONS

1 - Copolyamide thermoplastique caractérisé en ce qu'il résulte de la réaction entre au moins un monomère multifonctionnel répondant à la formule générale I suivante :

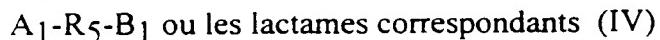
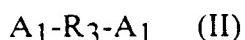


dans laquelle :

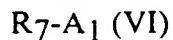
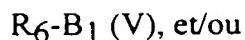
- n est un nombre entier supérieur ou égal à 2, de préférence compris entre 2 et 10 (bornes incluses)
- R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> peuvent être identiques ou différents et représentent une liaison covalente, un radical hydrocarboné aliphatique, arylaliphatique, aromatique ou alkylaromatique
- R est un radical aliphatique linéaire ou ramifié, un radical cycloaliphatique substitué ou non, un radical aromatique substitué ou non pouvant comprendre plusieurs noyaux aromatiques et/ou des hétéroatomes, une chaîne polymérique pouvant contenir des hétéroatomes.
- A représente la fonction amine ou sel et amine, ou la fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide
- B représente la fonction amine ou sel d'amine quand A représente une fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide, et une fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide quand A représente une fonction amine ou sel d'amine,

et, au moins un des monomères bifonctionnels de formules II à IV suivantes avec éventuellement des monomères monofonctionnels de formule V ou VI suivantes, ou avec un prépolymère obtenu à partir d'au moins un monomère bifonctionnel de formules II à IV suivantes et, éventuellement au moins un monomère monofonctionnel de formules V ou VI suivantes,

- les monomères bifonctionnels répondant aux formules générales suivantes:

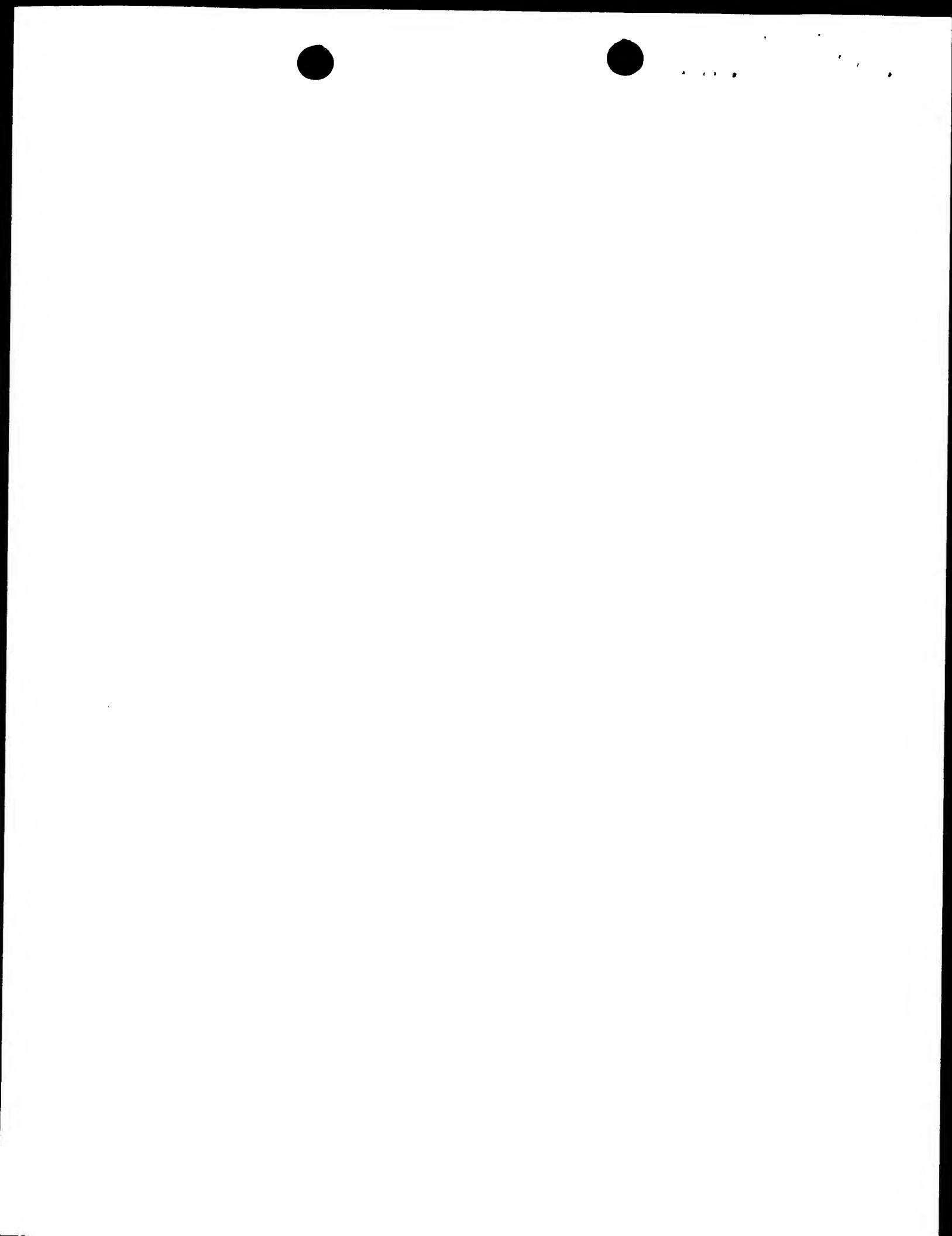


- les monomères monofonctionnels répondant aux formules générales suivantes :



dans lesquelles :

- A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub> représentent respectivement une fonction acide, ester ou chlorure d'acide, et une fonction amine, ou un sel d'amine.



R<sub>3</sub>, R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub>, R<sub>6</sub>, R<sub>7</sub> représentent des radicaux hydrocarbonés alkyles linéaires ou ramifiés, aromatiques substitués ou non alkylaryles, arylalkyles ou cycloaliphatiques pouvant comprendre des insaturations, le rapport molaire entre les monomères multifonctionnels de formule I et la somme des monomères difonctionnels de formule II, III, IV et monofonctionnels de formules V et VI étant compris entre 0,01 % et 5 %, de préférence entre 0,05 % et 1 %.

5 2 - Copolyamide selon la revendication 1, caractérisé en ce que le radical R est un radical aromatique.

10

3 - Copolyamide selon l'une des revendications 1 à 2, caractérisé en ce que le monomère de formule I est un composé dans lequel A représente la fonction amine, B la fonction acide, n est égal à 2 et R représente un radical aromatique, R<sub>1</sub> et R<sub>2</sub> représentent une liaison covalente.

15

4 - Copolyamide selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que le monomère de formule I est l'acide 5-amino-isophthalique.

20

5 - Copolyamide selon l'une des revendications 1, caractérisé en ce que le monomère de formule I est l'acide 6-amino-undécandoïque.

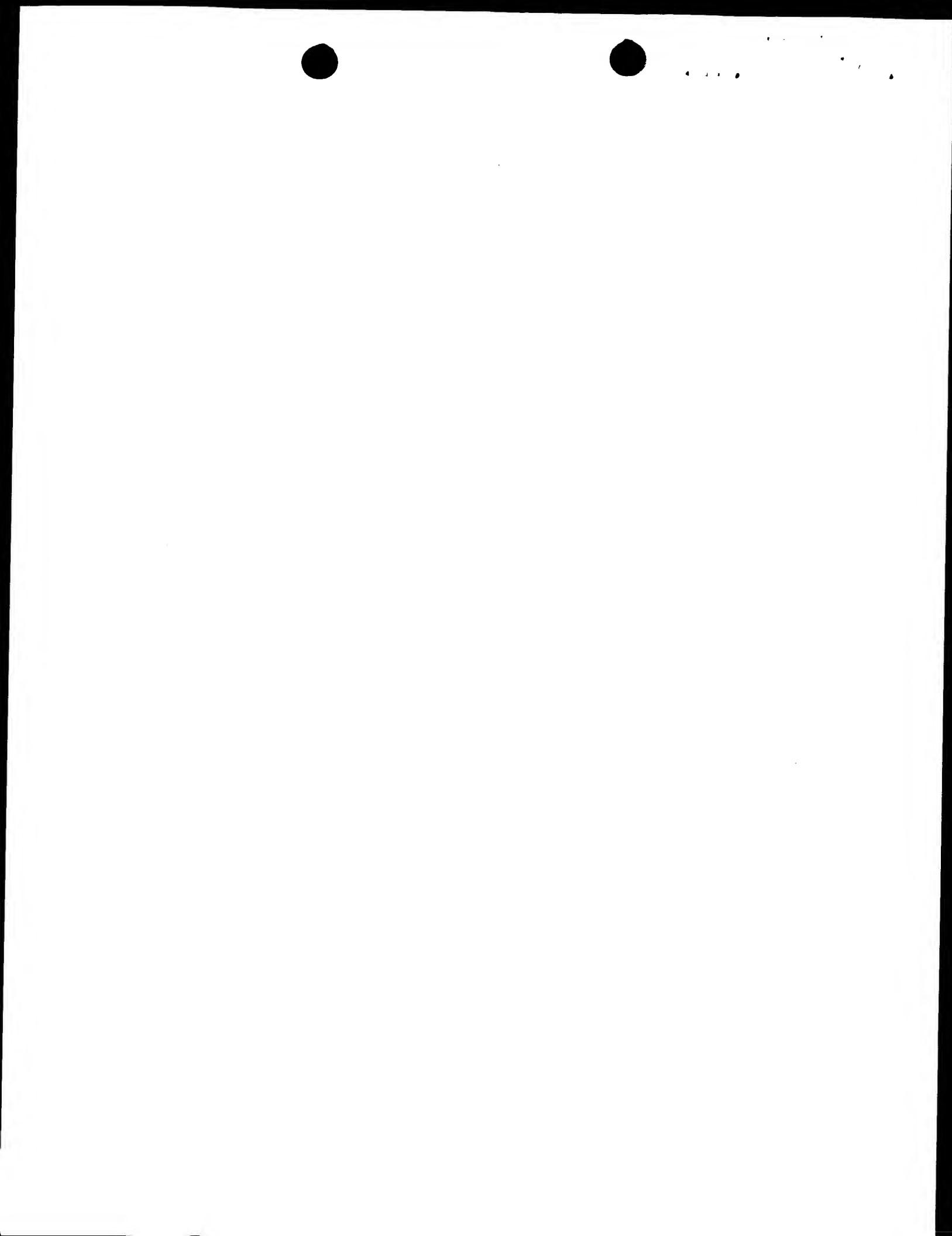
6 - Copolyamide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il présente un indice de fluidité (MFI) en milieu fondu inférieur à 5 g/10 min (mesuré à 275°C sous une charge de 2160 g).

25

7. Copolyamide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il présente un indice de distribution D des masses moléculaires supérieur à 2.

30

8 - Procédé de fabrication d'un copolyamide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il consiste à ajouter dans la masse réactionnelle contenant des monomères bifonctionnels de formules II à IV et, éventuellement des monomères monofonctionnels de formules V ou VI, conduisant à un polyamide linéaire, une quantité déterminée d'un monomère plurifonctionnel de formule I, puis à réaliser la polycondensation dans les conditions de température et pression utilisées pour la polymérisation dudit polyamide linéaire.



9 - Procédé de fabrication d'un copolyamide selon l'une des revendications 1 à 7, caractérisé en ce qu'il consiste à synthétiser un prépolymère d'un polyamide linéaire à partir de monomère(s) de formules II à IV et, éventuellement des monomères monofonctionnels de formule V ou VI, à ajouter à cedit prépolymère en milieu solide ou 5 fondu une quantité déterminée de monomère polyfonctionnel, puis à faire réagir ledit monomère polyfonctionnel et ledit prépolymère soit en phase solide soit en phase fondue.

10 - Procédé selon la revendication 9, caractérisé en ce qu'un catalyseur d'amidification ou de polycondensation est ajouté avec le monomère polyfonctionnel.

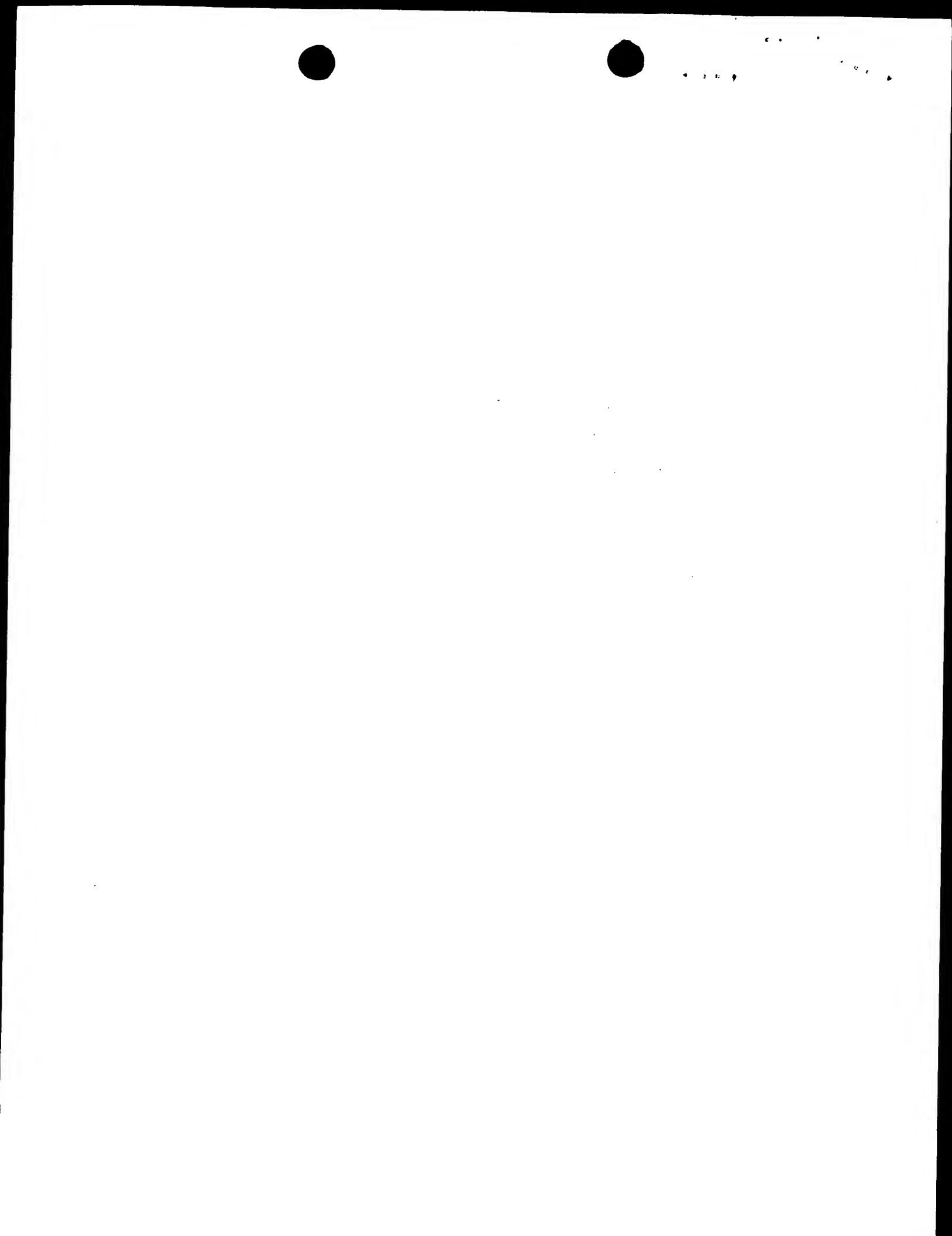
11 - Composition comprenant comme matrice au moins un copolyamide selon l'une des revendications 1 à 7 et d'autres composants choisis dans le groupe comprenant des charges de renfort, des charges de remplissage, des additifs antioxydants, de 15 stabilisation, des pigments, des colorants, des ignifugeants, des additifs d'aide au moulage.

20

25

30

35



09/462381  
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

10

PCT

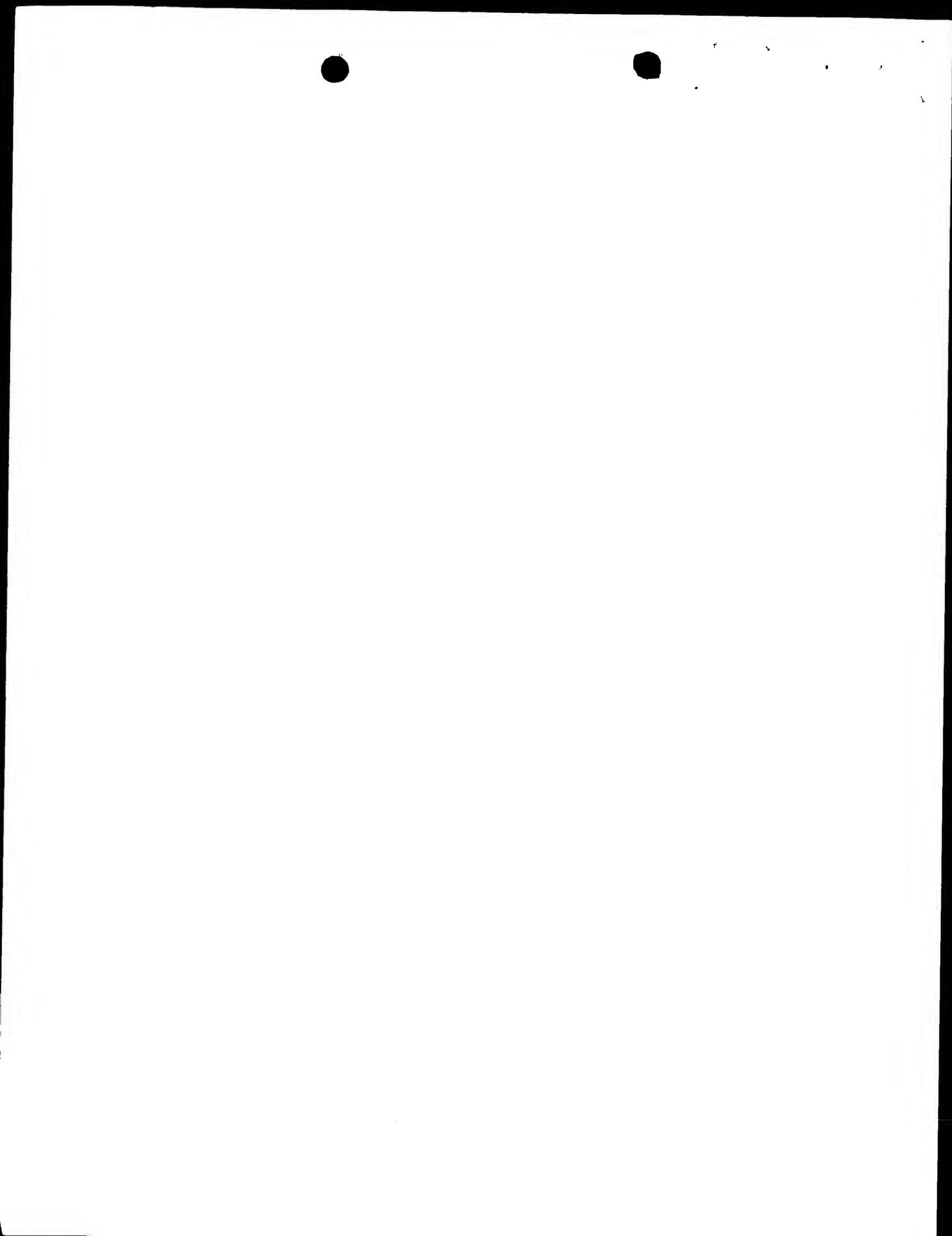
INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference  R 97076	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No.  PCT/EP98/03858	International filing date (day/month/year)  24 June 1998 (24.06.1998)	Priority date (day/month/year)  17 July 1997 (17.07.1997)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC  C08G 69/00, 69/26, 69/32, 83/00		
Applicant  RHODIA ENGINEERING PLASTICS S.R.L.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of <u>6</u> sheets, including this cover sheet.
<input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).  These annexes consist of a total of <u>3</u> sheets.
3. This report contains indications relating to the following items:  I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report II <input type="checkbox"/> Priority III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application

Date of submission of the demand  04 February 1999 (04.02.1999)	Date of completion of this report  26 October 1999 (26.10.1999)
Name and mailing address of the IPEA/EP  European Patent Office D-80298 Munich, Germany Facsimile No. 49-89-2399-4465	Authorized officer  Telephone No. 49-89-2399-0



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP98/03858

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

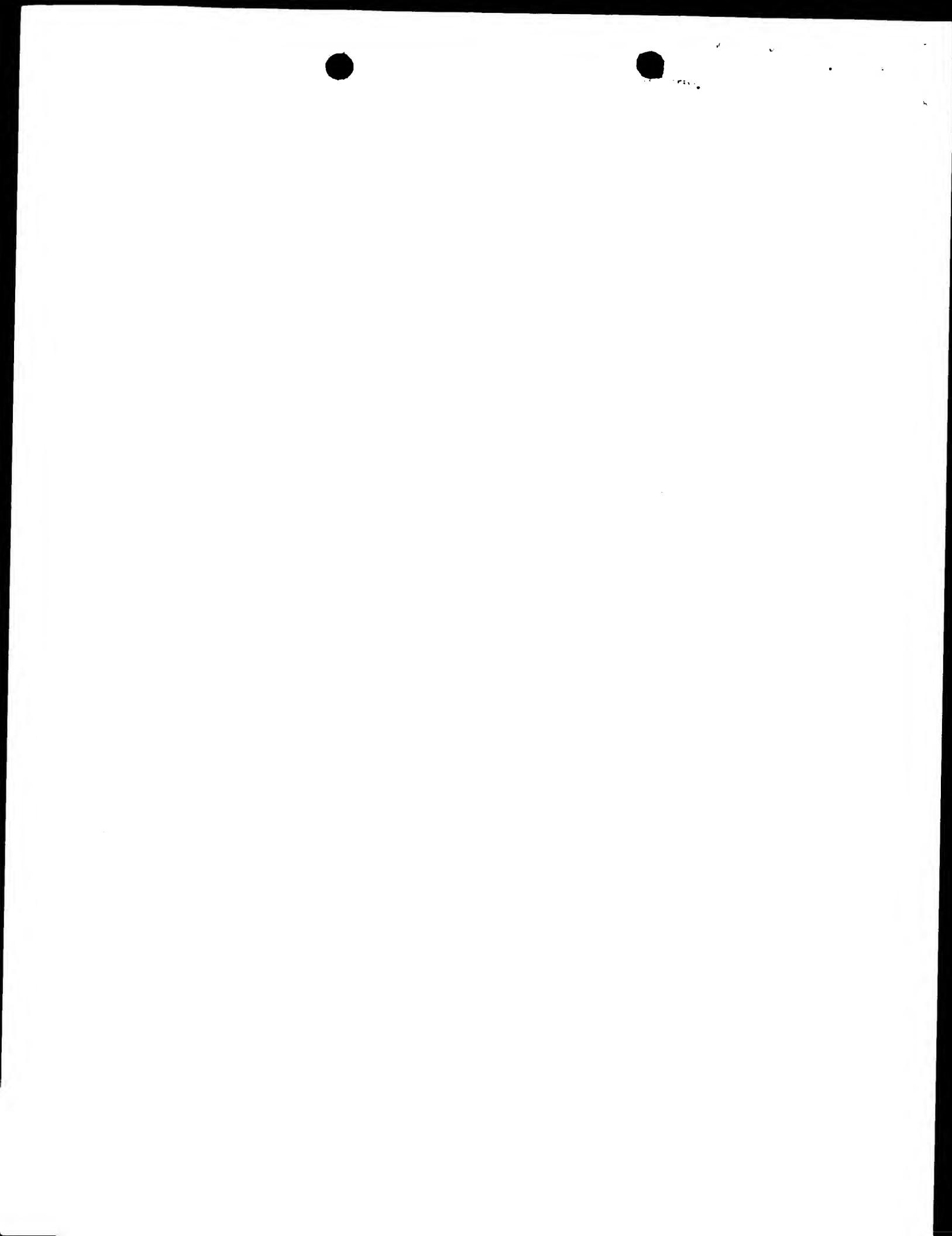
 the international application as originally filed. the description, pages 1-8, as originally filed,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_. the claims, Nos. \_\_\_\_\_, as originally filed,  
Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
Nos. 1-11, filed with the letter of 02 June 1999 (02.06.1999),  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_. the drawings, sheets/fig 1/2, 2/2, as originally filed,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

 the description, pages \_\_\_\_\_  
 the claims, Nos. \_\_\_\_\_  
 the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3.  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/EP 98/03858

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

## 1. Statement

Novelty (N)	Claims	2-5, 10	YES
	Claims	1, 6-9, 11	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	2-5, 10	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-11	YES
	Claims		NO

## 2. Citations and explanations

1. The following documents are cited in the present notification:

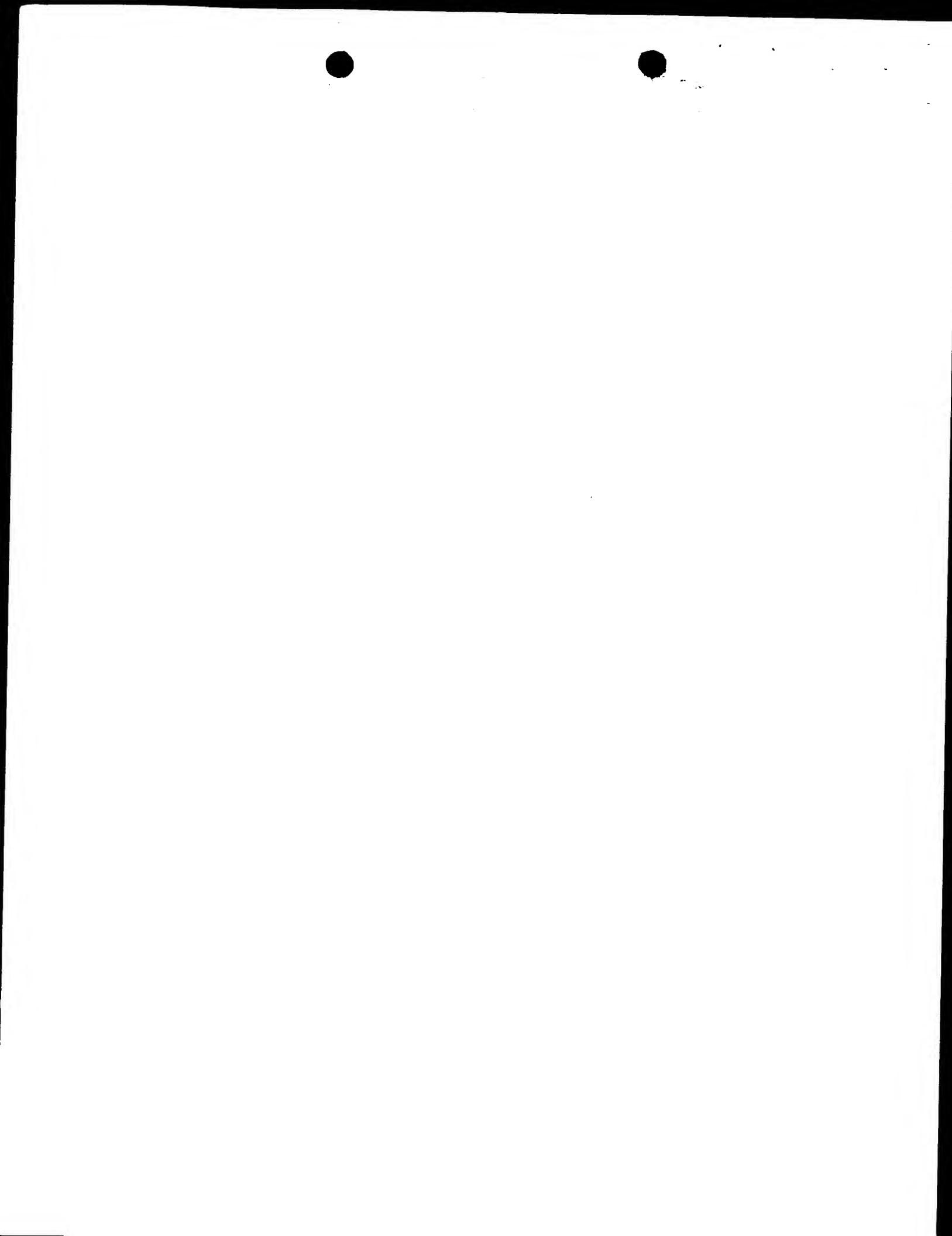
D1: WO-A-93/09162

D2: EP-A-360062

D3: FR-A-2015983

D4: EP-A-345648

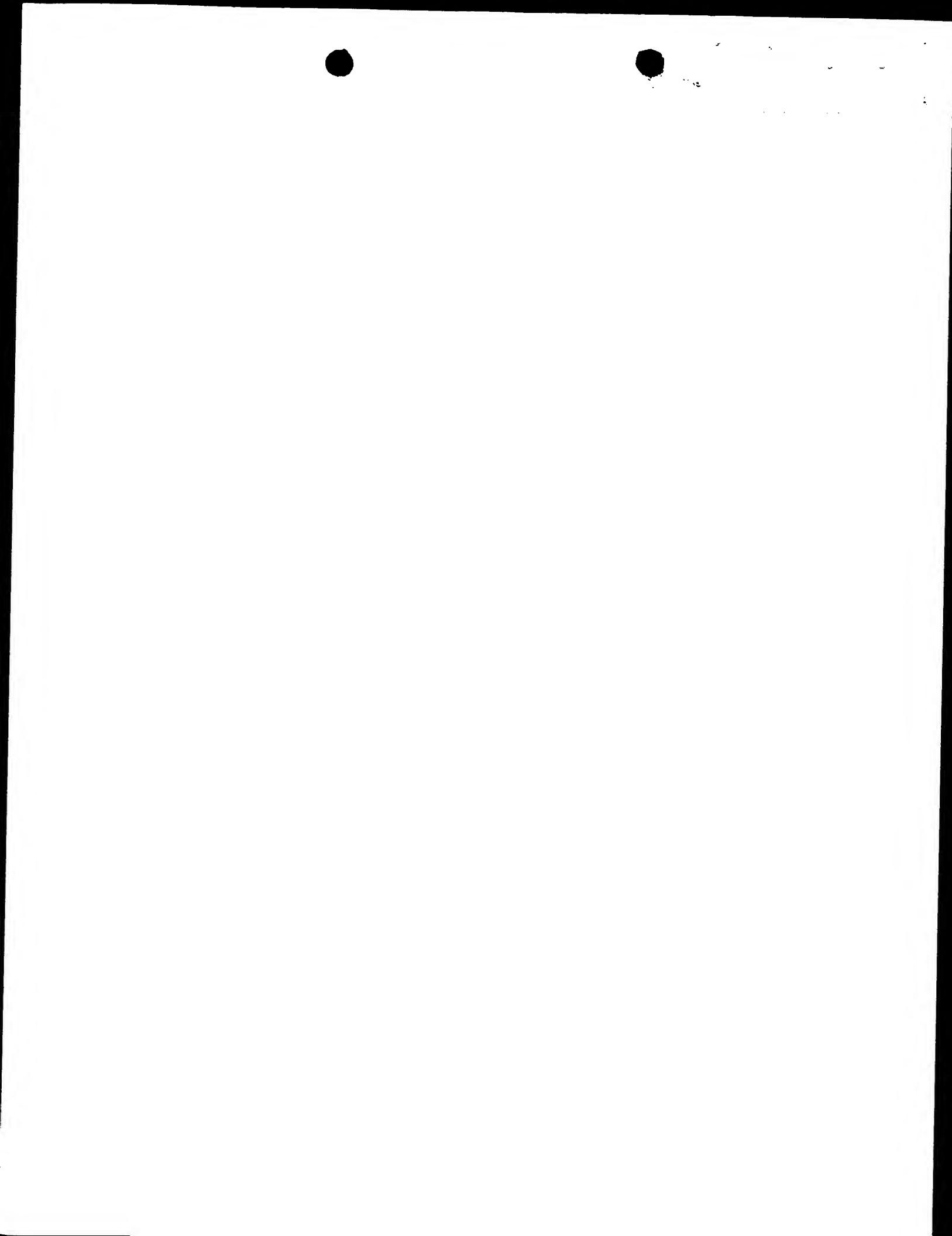
2. D2 describes branched polyamides prepared by adding lysine (i.e. a compound having two amine functions and one acid function) in an amount of around 0.1-2 wt % to the mixture of bifunctional monomers such as diacids, diamines, amino acids or lactams. As a result of the use of the branching agent, the resulting polyamides have a viscosity such that they are more suitable for processing by extrusion blow-moulding (see D2, claims 1-3; examples 1-3; page 1, lines 35-50; page 3, line 39 to page 4, line 50; page 5, lines 20-23 and 40-46). The applicant's argument to the effect that the present claim 1 does not cover trifunctional compounds having two amine functions and one acid function (e.g. lysine) does not appear to be relevant since it is clearly indicated that B may be an amine group (see claim 1:



"B is an amine group when A is an acid group"; "n is an integer no lower than 2").

Therefore, D2 is considered to deprive claims 1, 6-9 and 11 of novelty (PCT Article 33(2)).

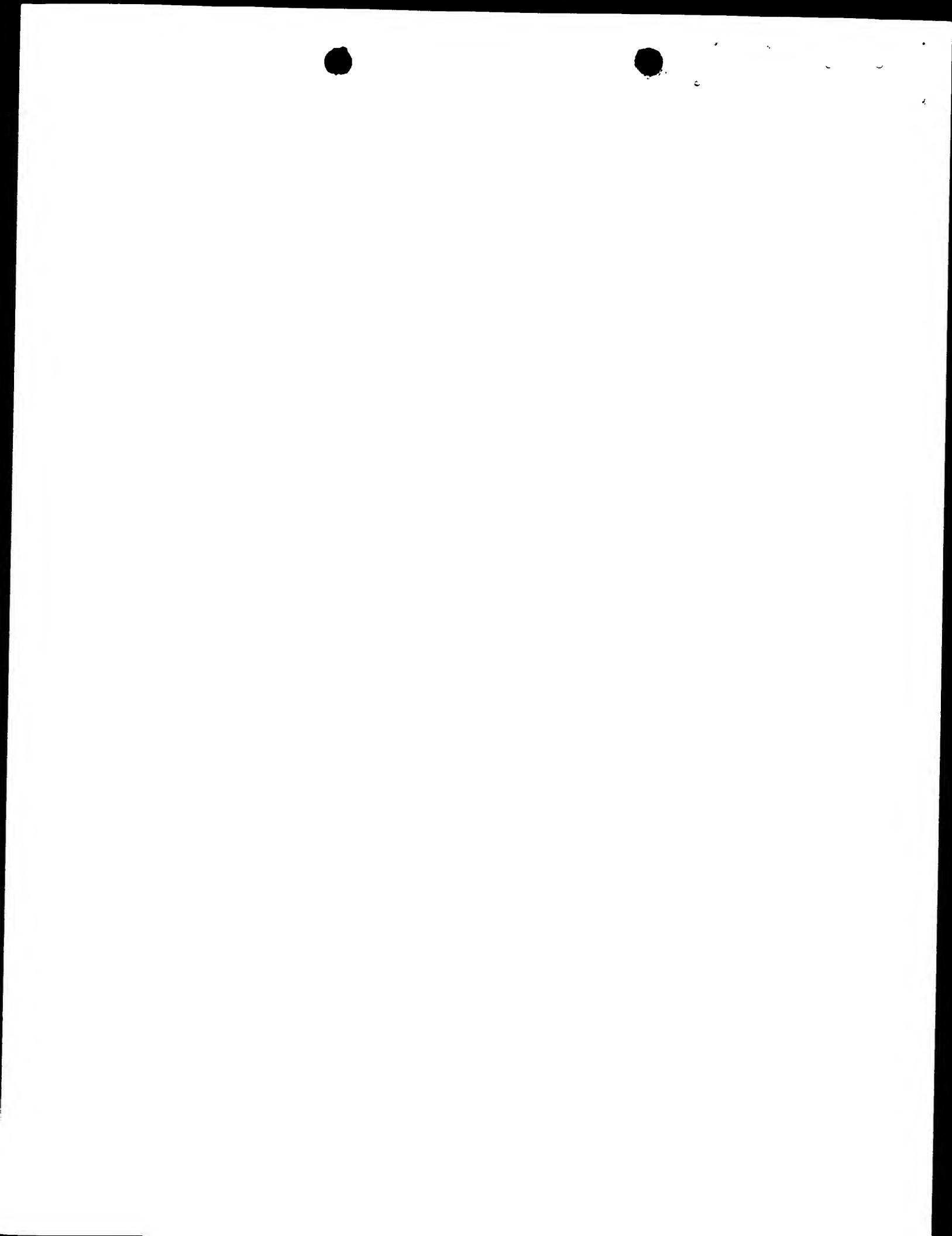
3. D1 describes branched aromatic polyamides prepared by reacting aromatic amino diacids (e.g. 5-amino-isophthalic acid) or aromatic diamines having a carboxylic acid group with an amino acid such as aminobenzoic acid (see D1, claims 1, 3, 5 and 6). Since the amount of multifunctional monomer used in the copolyamides according to claim 1 of the present application has now been restricted to between 0.01 and 5 mol %, D1 is not longer considered to deprive said claim of novelty.
4. Therefore, the subject matter of claims 2-5 and 10 is considered to be novel over D1 and D2 (PCT Article 33(2)).
5. It should also be noted that the use of trifunctional compounds (e.g. triamines or tricarboxylic acids) in combination with monofunctional compounds to alter the viscosity of polyamides is also known from D3 and D4 (see D3, claims, table 1, figure 1; and D4, page 2, lines 1-13; page 3, lines 9-25; claim 1).
6. The aim the applicant set out to achieve was that of providing thermoplastic polyamides having a high viscosity in molten media and good mechanical properties.  
In so far as altering the viscosity of thermoplastic polyamides by using at least trifunctional monomers is known from the prior art (see D2, D3 and D4), no



**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**International application No.  
PCT/EP 98/03858

inventive step could have been acknowledged unless the applicant had shown by means of comparative tests that the selection of specific at least trifunctional monomers led to unexpected properties in the resulting altered polyamides.

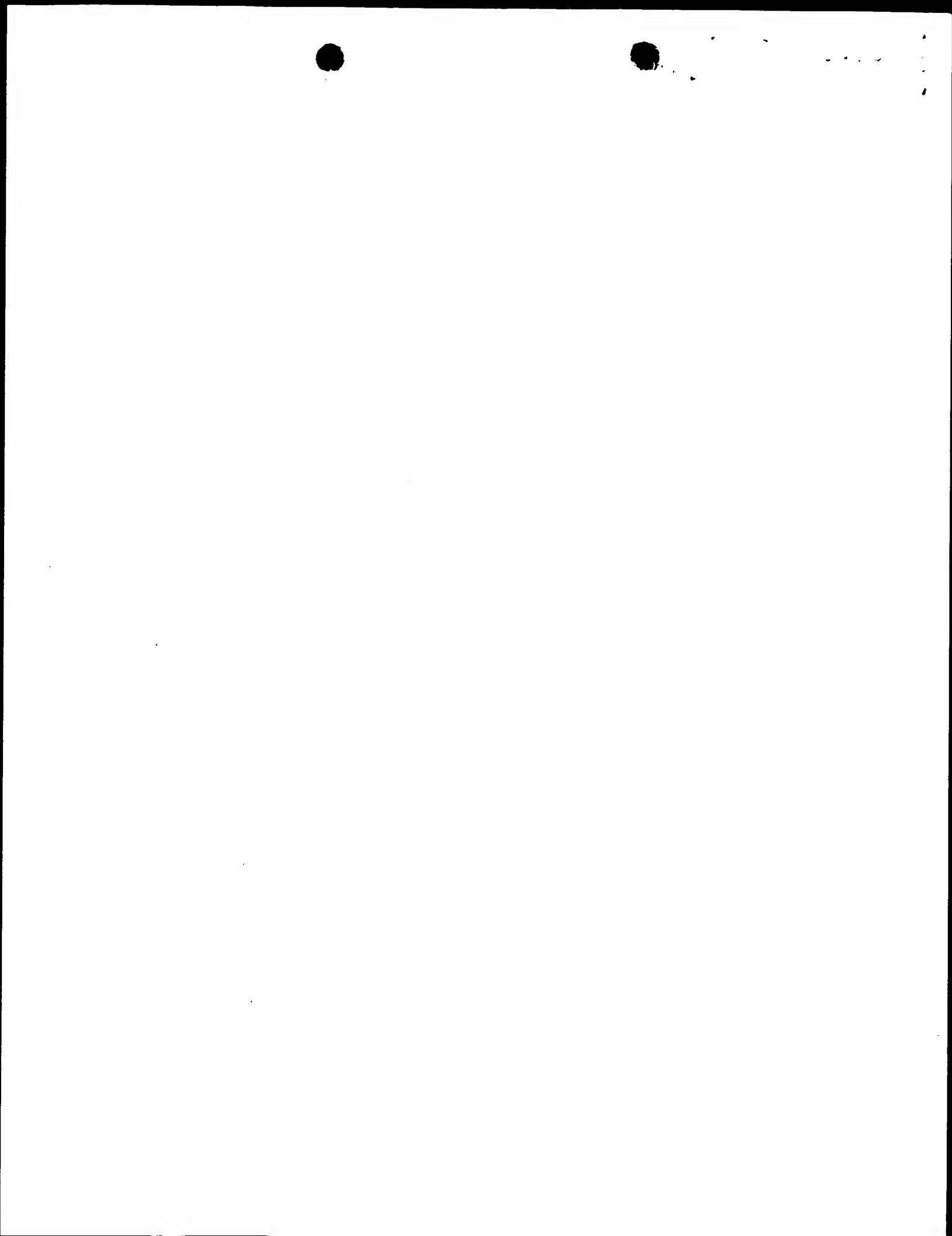
In the absence of data to this effect, the subject matter of claims 2-5 and 10 cannot be considered to involve an inventive step (PCT Article 33(3)).



**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**International application No.  
PCT/EP 98/03858**VIII. Certain observations on the international application**

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. The present description includes no reference to a prior art document. Applicants are expected to cite the relevant prior art of which they are aware (PCT Rule 5.1(a)(ii)).
2. Claim 4 is insufficiently supported by the description (specifically, the use of 5-amino-isophthalic acid is mentioned only in the examples) (PCT Article 6).
3. There is no clear support for claim 8 in the description (PCT Article 6).
4. The method for calculating distribution coefficient D should be indicated in claim 7 (PCT Article 6).
5. The description has not been made consistent with the new claims (PCT Article 6).



091462381  
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

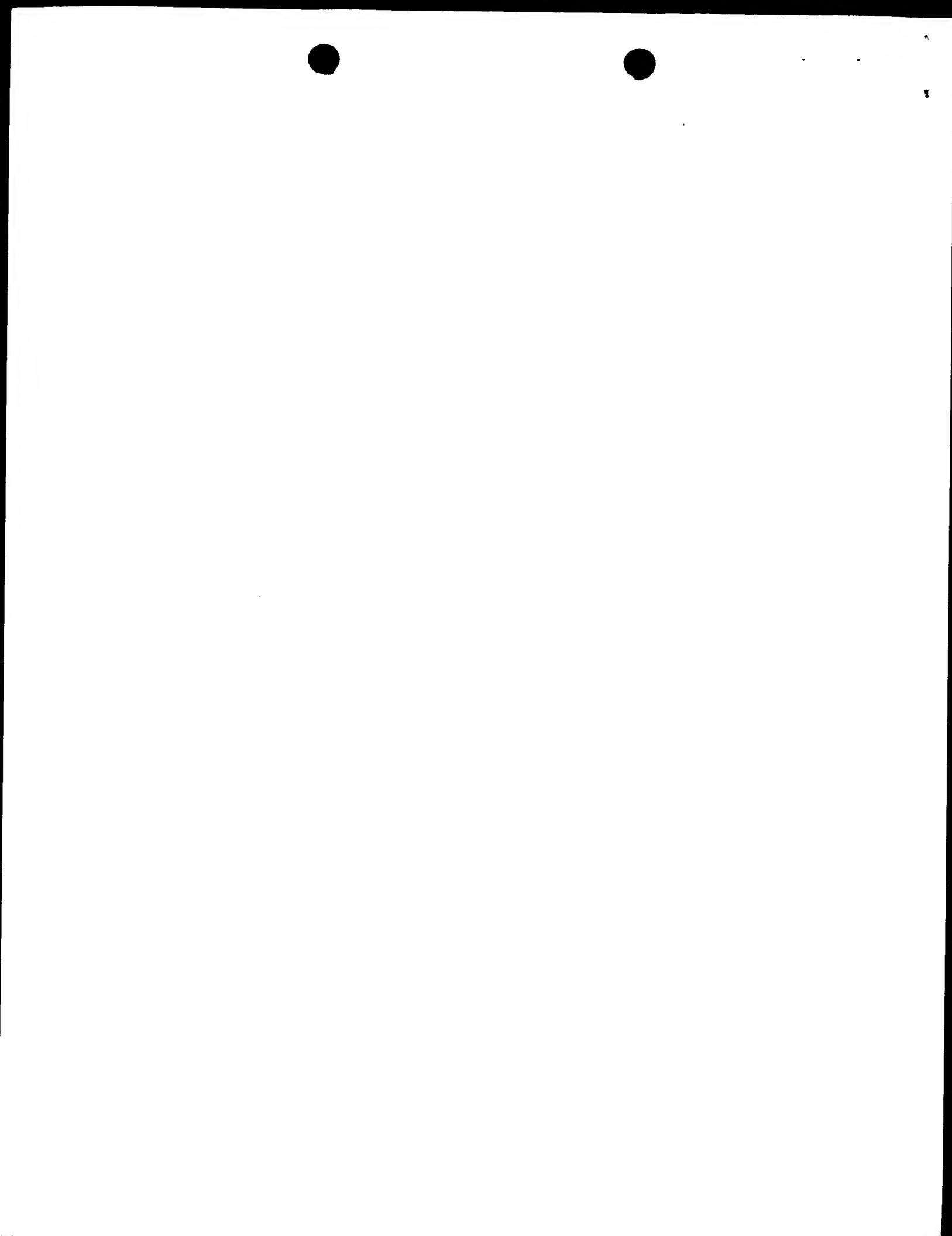
INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference <b>R 97070</b>	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. <b>PCT/EP98/03859</b>	International filing date ( <i>day/month/year</i> ) <b>24 June 1998 (24.06.1998)</b>	Priority date ( <i>day/month/year</i> ) <b>03 July 1997 (03.07.1997)</b>
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC <b>B32B 27/34, 27/18, F16L 11/04</b>		
Applicant <b>RHODIA ENGINEERING PLASTICS S.R.L.</b>		

<ol style="list-style-type: none"><li>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</li><li>2. This REPORT consists of a total of <u>6</u> sheets, including this cover sheet.</li></ol>
<p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>1</u> sheets.</p>
<ol style="list-style-type: none"><li>3. This report contains indications relating to the following items:<ol style="list-style-type: none"><li>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</li><li>II <input type="checkbox"/> Priority</li><li>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</li><li>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</li><li>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</li><li>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</li><li>VII <input checked="" type="checkbox"/> Certain defects in the international application</li><li>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application</li></ol></li></ol>

Date of submission of the demand <b>01 February 1999 (01.02.1999)</b>	Date of completion of this report <b>12 August 1999 (12.08.1999)</b>
Name and mailing address of the IPEA/EP European Patent Office D-80298 Munich, Germany Facsimile No. 49-89-2399-4465	Authorized officer Telephone No. 49-89-2399-0



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP98/03859

## I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

the international application as originally filed.

the description, pages 1-13, as originally filed,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

the claims, Nos. 6-20, as originally filed,  
Nos. \_\_\_\_\_, as amended under Article 19,  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
Nos. 1-5, filed with the letter of 28 June 1999 (28.06.1999),  
Nos. \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_, as originally filed,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the demand,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_,  
sheets/fig \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

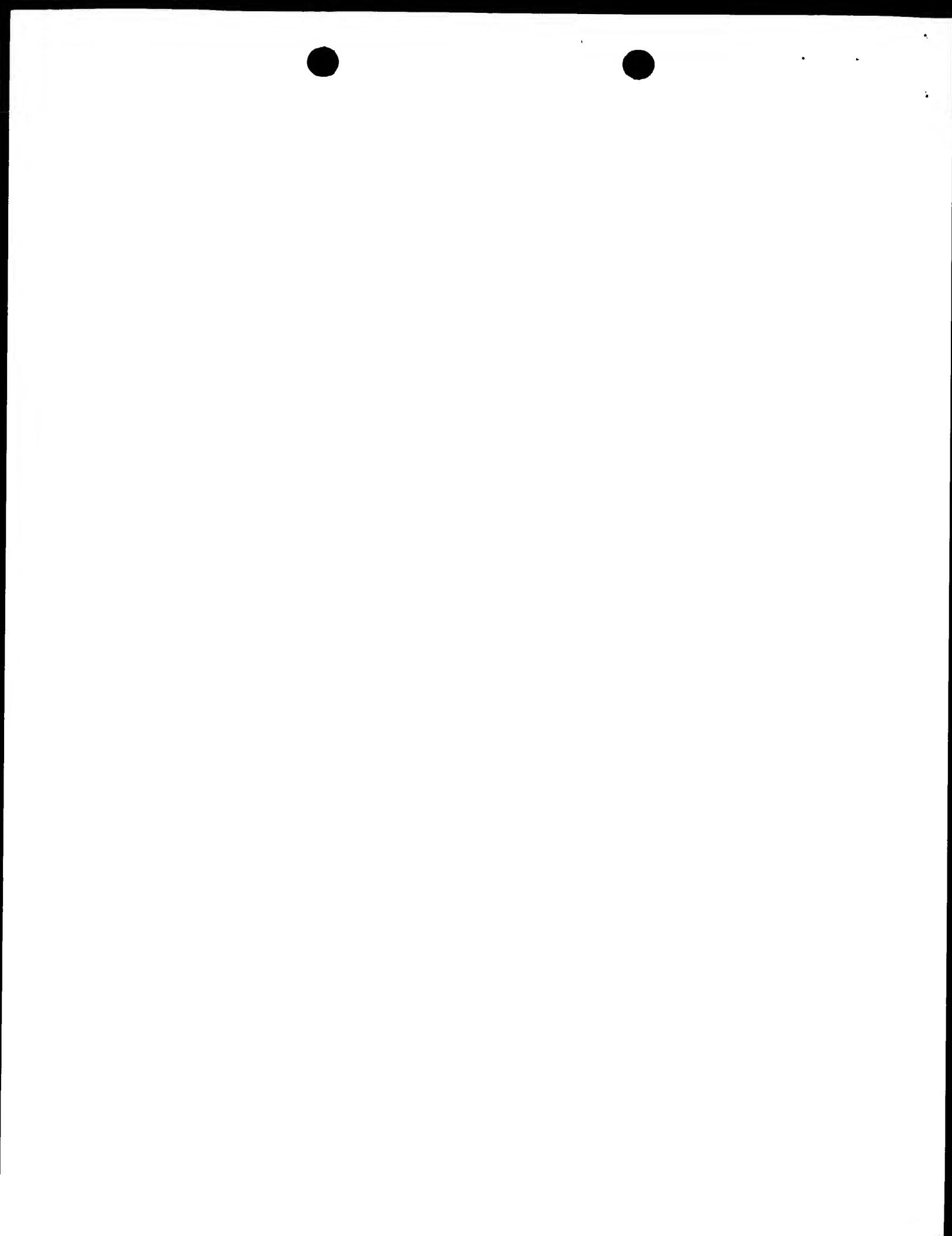
the description, pages \_\_\_\_\_

the claims, Nos. \_\_\_\_\_

the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

3.  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:



## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 98/03859

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**

## 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-20	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-20	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-20	YES
	Claims		NO

## 2. Citations and explanations

Reference is made to the following documents:

D1: WO 97/12938

D2: EP-A-0 470 605

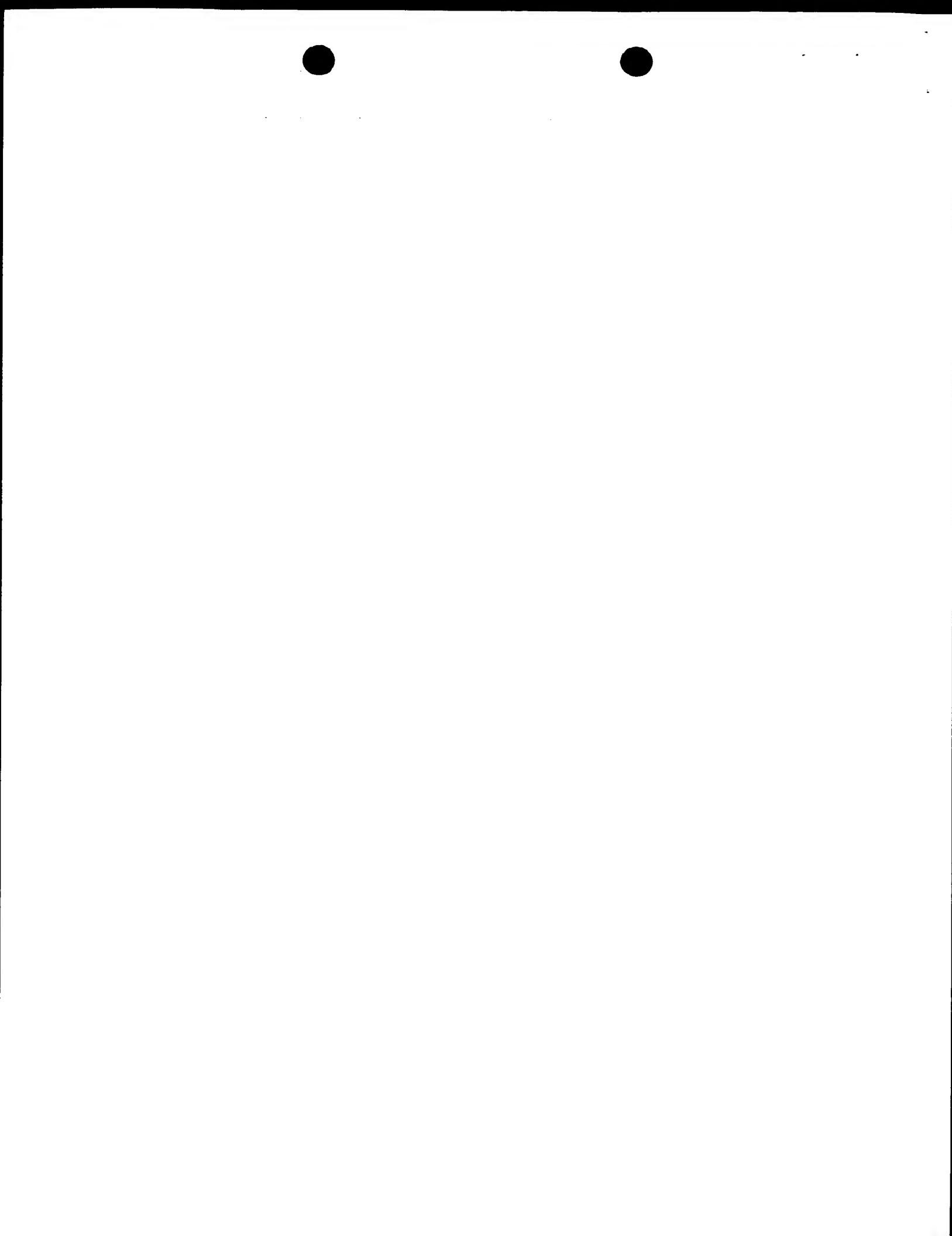
D3: DATABASE WPI Section Ch, Week 9349 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class A17, AN 93-392205 XP002059334 & JP 05 293 916 A (TOYOTA CENT RES & DEV LAB), 9 November 1993

D4: US-A-5 219 003

Document D1 was not cited in the International Search Report.

1. D1 discloses the composition of which the present outer layer, defined in the present Claim 1 (Claims 1-11), is formed. The features of the present Claims 2, 3, 10 and 11 are also disclosed in D1. The compositions of D1 also form structures in the shape of a pipe for liquid fuels etc. (Claims 12 and 13).

The composition of D1 has a good resistance to saline solutions such as a solution of ZnCl<sub>2</sub> (page



2, lines 16-19). The teaching of D1 is considered to be the closest prior art.

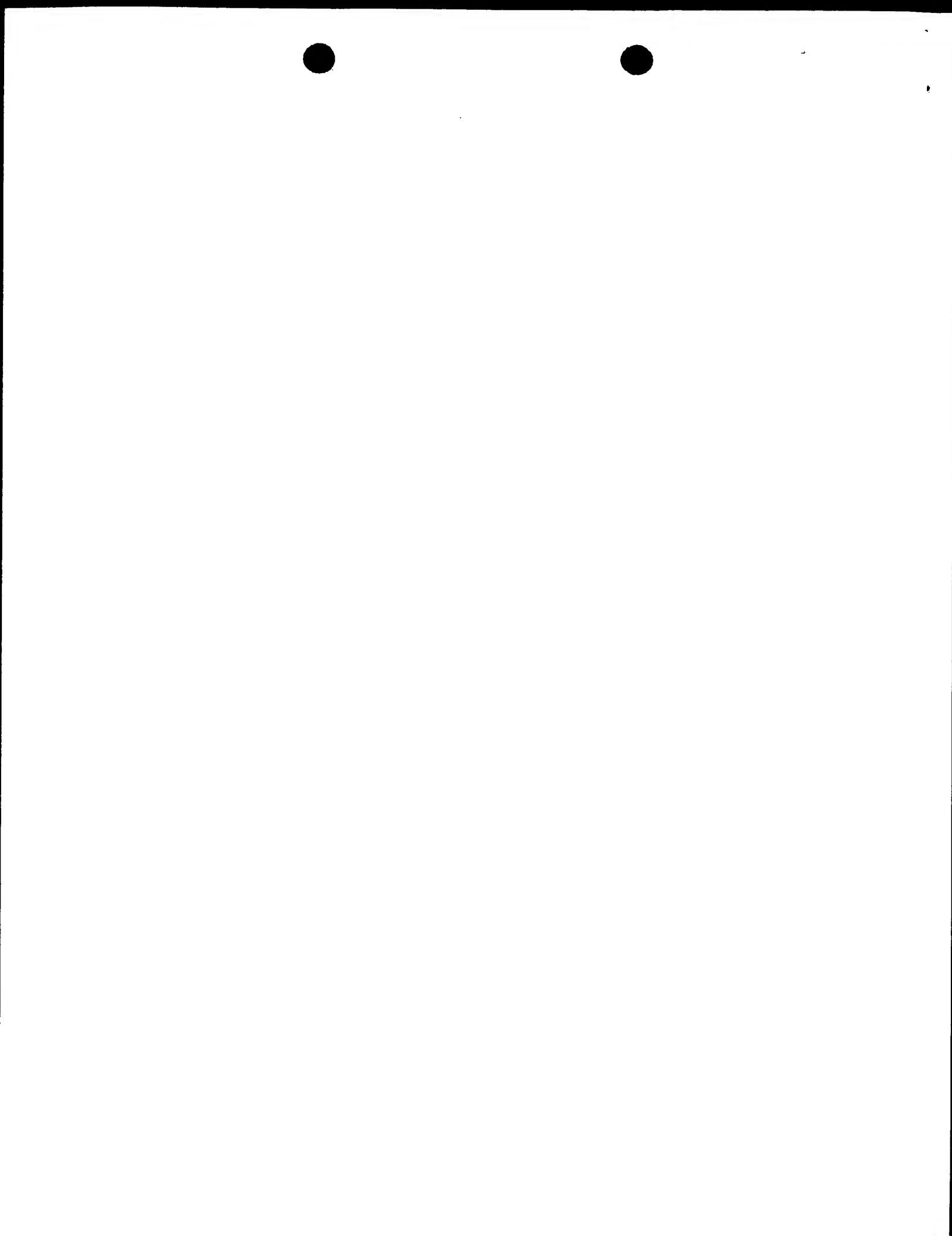
The subject matter of Claims 1-4, 10, 11 and 20 therefore differs from the closest prior art in that the structure also comprises an inner layer as defined in the present Claim 1. This layer has high mixed hydrocarbon fuel barrier properties, a very good dimensional stability in the presence of alcohol compounds and high mechanical resistance properties to cold shocks etc. (page 3, lines 9-15 of the present description).

The use of such compounds to achieve these effects appears to be known already from D2 (page 3) and D3 (including the point of 10%). It is known from D4 (col. 2, lines 21-27) that there are no delamination problems or lack of adhesion between the layers of different polyamides. Also, the present description does not describe the synergies between the present outer layer and the present inner layer.

The subject matter of Claims 1-4, 10, 11 and 20, as a result, does not involve an inventive step (PCT Article 33(3)).

2. The additional features of Claims 12 and 14-17 also appear to be divulged by D2. The additional features of Claims 13, 18 and 19 are variations within the teaching of D2 which do not appear to cause an unexpected effect which would offer a solution to the present problems.

The subject matter of Claims 12-19 does not, as a result, involve an inventive step (PCT Article 33(3)).

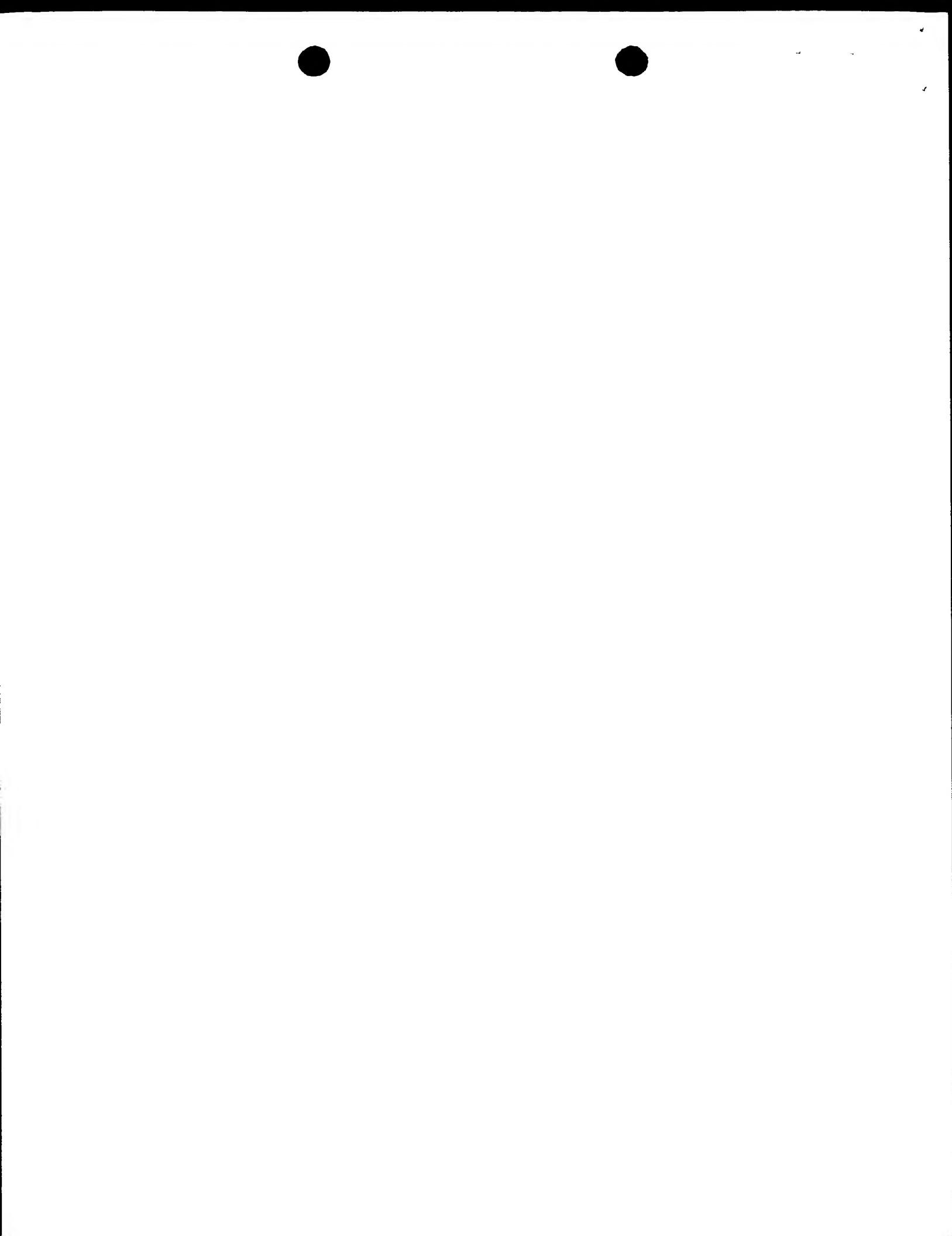


**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

International application No.

PCT/EP 98/03859

3. As D1 also teaches the use of three layers, it would appear that the subject matter of Claims 5-9 also does not involve an inventive step (PCT Article 33(3)).

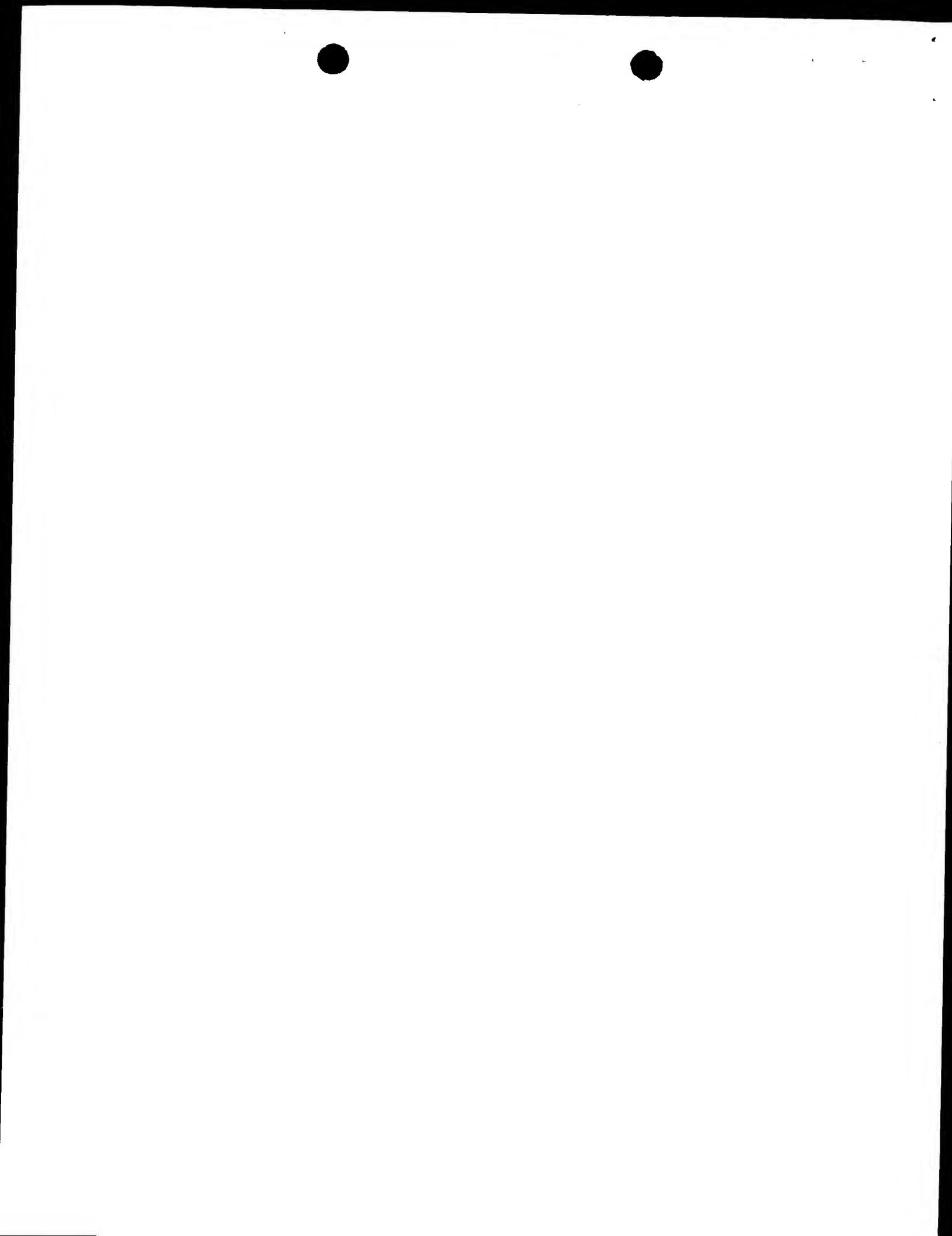


**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**International application No.  
PCT/EP 98/03859**VII. Certain defects in the international application**

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

Independent Claim 1 is not presented in two parts in accordance with PCT Rule 6.3(b), when such a presentation would appear to be appropriate in the given circumstances, the features known in combination from the prior art (document D1) appearing in a preamble (PCT Rule 6.3(b)(i)) and the remaining features figuring in a characterising portion (PCT Rule 6.3(b)(ii)).

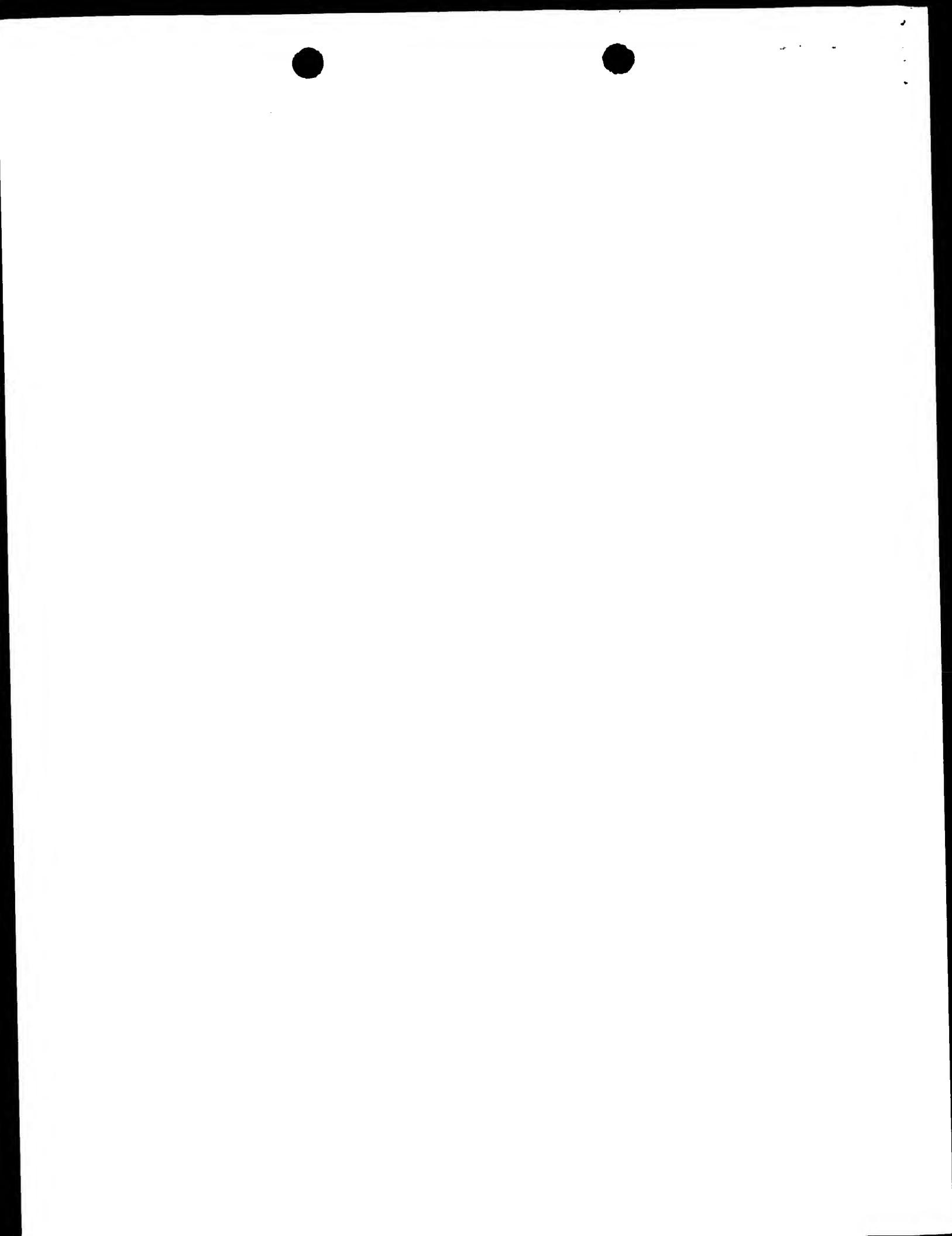
As a result independent Claim 1 should be rewritten. If the applicants are, however, of the opinion that a two part presentation would be inappropriate, they should state their reasons in their reply. Furthermore, the description should clearly show which features of the subject of Claim 1 are already disclosed in combination in document D1 (cf. PCT Guidelines PCT/GL/3 III, 2.3a).



**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**International application No.  
PCT/EP 98/03859**VIII. Certain observations on the international application**

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. The application does not appear to fulfil the clarity requirements of PCT Article 6.
- 1.1 Page 2, lines 1 and 2 of the description imply that the feature of Claim 2 is an essential feature.





## DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITE DE COOPERATION EN MATIERE DE BREVETS (PCT)

(51) Classification internationale des brevets <sup>6</sup> : <b>C08G 69/00, 69/26, 69/32, 83/00</b>		A1	(11) Numéro de publication internationale: <b>WO 99/03909</b> (43) Date de publication internationale: 28 janvier 1999 (28.01.99)
(21) Numéro de la demande internationale: PCT/EP98/03858			(81) Etats désignés: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, HU, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, brevet ARIPO (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), brevet eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), brevet européen (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), brevet OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
(22) Date de dépôt international: 24 juin 1998 (24.06.98)			
(30) Données relatives à la priorité: 97/09313 17 juillet 1997 (17.07.97) FR			
(71) Déposant ( <i>pour tous les Etats désignés sauf US</i> ): NYLTECH ITALIA [IT/IT]; Via 1o Maggio, 80, I-20020 Ceriano Laghetto (IT).			
(72) Inventeurs; et (75) Inventeurs/Déposants ( <i>US seulement</i> ): DI SILVESTRO, Giuseppe [IT/IT]; Via Salvatore Quasimodo, 2, Lentate Sul Seveso (IT). GUAITA, Cesare [IT/IT]; Via Francesco Baracca, 6, I-21049 Tradate (IT). SPERONI, Franco [IT/IT]; Via Monte Rosa, 11, I-20020 Ceriano Laghetto (IT). YUAN, Cuiming [IT/IT]; Via Sesto S. Giovanni, 31/F, I-20126 Milano (IT). ZHANG, Haichun [IT/IT]; Viale Rimembranze, 2, I-21047 Saronno (IT).			
(74) Mandataire: ESSON, Jean-Pierre; Rhodia Services, Direction de la Propriété Industrielle, Crit-Carrières, Boite postale 62, F-69192 Saint-Fons Cedex (FR).			

(54) Title: THERMOPLASTIC COPOLYAMIDE, COMPOSITION BASED THEREON

(54) Titre: COPOLYAMIDE THERMOPLASTIQUE, COMPOSITION A BASE DE CELUI-CI

## (57) Abstract

The invention concerns a thermoplastic copolyamide and a composition comprising as matrix said thermoplastic copolyamide, and a method for making such a thermoplastic copolyamide. More particularly it concerns a copolyamide of the statistical tree type resulting from the reaction between a plurifunctional monomer comprising at least three reactive functions to form an amide function, said functions being of two different types, and bifunctional monomers conventionally used in making linear polyamides. The resulting copolyamide has a very low softness index in molten state compared to the linear polyamide and improved shock-resistant properties. The invention also concerns methods for making these copolyamides and compositions for moulding, extruding or injecting parts. Said compositions comprise fillers and additives and said copolyamide as matrix.

## (57) Abrégé

La présente invention concerne un copolyamide thermoplastique et une composition comprenant comme matrice ce copolyamide thermoplastique, ainsi qu'un procédé de fabrication d'un tel copolyamide thermoplastique. Elle concerne plus particulièrement un copolyamide du type arbre statistique résultant de la réaction entre un monomère plurifonctionnel comprenant au moins trois fonctions réactives pour former une fonction amide, ces fonctions étant de deux types différents, et des monomères bifonctionnels classiquement utilisés dans la fabrication des polyamides linéaires. Le copolyamide obtenu présente un indice de fluidité en fondu très faible par rapport au polyamide linéaire et des propriétés de résistance aux chocs améliorées. L'invention concerne également des procédés de fabrication de ces copolyamides ainsi que des compositions pour le moulage, l'extrusion ou l'injection de pièces. Ces compositions comprennent des charges et additifs et comme matrice un copolyamide de l'invention.

**UNIQUEMENT A TITRE D'INFORMATION**

Codes utilisés pour identifier les Etats parties au PCT, sur les pages de couverture des brochures publant des demandes internationales en vertu du PCT.

AL	Albanie	ES	Espagne	LS	Lesotho	SI	Slovénie
AM	Arménie	FI	Finlande	LT	Lituanie	SK	Slovaquie
AT	Autriche	FR	France	LU	Luxembourg	SN	Sénégal
AU	Australie	GA	Gabon	LV	Lettonie	SZ	Swaziland
AZ	Azerbaïdjan	GB	Royaume-Uni	MC	Monaco	TD	Tchad
BA	Bosnie-Herzégovine	GE	Géorgie	MD	République de Moldova	TG	Togo
BB	Barbade	GH	Ghana	MG	Madagascar	TJ	Tadjikistan
BE	Belgique	GN	Guinée	MK	Ex-République yougoslave de Macédoine	TM	Turkménistan
BF	Burkina Faso	GR	Grèce	ML	Mali	TR	Turquie
BG	Bulgarie	HU	Hongrie	MN	Mongolie	TT	Trinité-et-Tobago
BJ	Bénin	IE	Irlande	MR	Mauritanie	UA	Ukraine
BR	Brésil	IL	Israël	MW	Malawi	UG	Ouganda
BY	Bélarus	IS	Islande	MX	Mexique	US	Etats-Unis d'Amérique
CA	Canada	IT	Italie	NE	Niger	UZ	Ouzbékistan
CF	République centrafricaine	JP	Japon	NL	Pays-Bas	VN	Viet Nam
CG	Congo	KE	Kenya	NO	Norvège	YU	Yougoslavie
CH	Suisse	KG	Kirghizistan	NZ	Nouvelle-Zélande	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	République populaire démocratique de Corée	PL	Pologne		
CM	Cameroun	KR	République de Corée	PT	Portugal		
CN	Chine	KZ	Kazakstan	RO	Roumanie		
CU	Cuba	LC	Sainte-Lucie	RU	Fédération de Russie		
CZ	République tchèque	LI	Liechtenstein	SD	Soudan		
DE	Allemagne	LK	Sri Lanka	SE	Suède		
DK	Danemark	LR	Libéria	SG	Singapour		

## COPOLYAMIDE THERMOPLASTIQUE, COMPOSITION A BASE DE CELUI-CI

La présente invention concerne un copolyamide thermoplastique et une composition comprenant comme matrice ce copolyamide thermoplastique, ainsi qu'un procédé de fabrication d'un tel copolyamide thermoplastique.

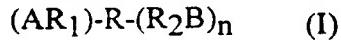
Dans le domaine des pièces réalisées en matière plastique, de nombreuses pièces sont obtenues par moulage d'une composition comprenant comme matrice un polyamide. Les polyamides généralement utilisés sont des polyamides linéaires aliphatiques, aromatiques ou semi-aromatiques.

Les nouveaux procédés de mise en forme de ces compositions, comme par exemple, l'extrusion-soufflage requièrent des compositions présentant une viscosité en milieu fondu élevée pour que la pièce extrudée avant le soufflage ne se déforme pas ou faiblement sous l'effet de son propre poids. Toutefois, les propriétés mécaniques, élastiques et de résistance aux chocs des pièces ne doivent pas être affectées ou faiblement. Certaines solutions ont été proposées telles que l'utilisation de polyamides linéaires de haute viscosité obtenus par post-condensation en milieu solide, ou par addition d'agents d'extension de chaînes. Toutefois, ces solutions sont souvent difficiles à mettre en oeuvre ou altèrent certaines propriétés des pièces obtenues.

L'invention a pour but un nouveau polyamide présentant une viscosité élevée en milieu fondu, qui peut être obtenu par un procédé de fabrication simple et avec des caractéristiques mécaniques satisfaisantes, sans utiliser des procédés pour l'augmentation de cette viscosité, soit coûteux et difficilement contrôlables, soit pénalisants pour les propriétés de la pièce fabriquée.

A cet effet, l'invention propose un nouveau copolyamide présentant une structure du type arbre statistique.

Ce copolyamide est le résultat de la réaction entre au moins un monomère multifonctionnel répondant à la formule générale I suivante :



dans laquelle :

- n est un nombre entier supérieur ou égal à 2, de préférence compris entre 2 et 10 (bornes incluses)
- R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> peuvent être identiques ou différents et représentent une liaison covalente, un radical hydrocarboné aliphatique, arylaliphatique, aromatique ou alkylaromatique
- R est un radical aliphatique linéaire ou ramifié, un radical cycloaliphatique substitué ou non, un radical aromatique substitué ou non pouvant comprendre

plusieurs noyaux aromatiques et/ou des hétéroatomes, une chaîne polymérique pouvant contenir des hétéroatomes

- A représente la fonction amine ou sel et amine, ou la fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide
- 5 - B représente la fonction amine ou sel d'amine quand A représente une fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide, et une fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide quand A représente une fonction amine ou sel d'amine,

et, au moins un des monomères bifonctionnels de formules II à IV suivantes avec éventuellement au moins un des monomères monofonctionnels de formule V ou VI suivantes, ou avec un prépolymère obtenu à partir d'au moins un monomère bifonctionnel de formules II à IV suivantes et, éventuellement au moins un monomère monofonctionnel de formule V ou VI suivante,

- les monomères bifonctionnels répondant aux formules générales suivantes :
  - 15 A<sub>1</sub>-R<sub>3</sub>-A<sub>1</sub> (II)
  - B<sub>1</sub>-R<sub>4</sub>-B<sub>1</sub> (III) et/ou
  - A<sub>1</sub>-R<sub>5</sub>-B<sub>1</sub> ou les lactames correspondants (IV)
- les monomères monofonctionnels répondant aux formules générales suivantes :
  - 20 R<sub>6</sub>-B<sub>1</sub> (V), et/ou
  - R<sub>7</sub>-A<sub>1</sub> (VI)

dans lesquelles :

- A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub> représentent respectivement une fonction acide, ester ou chlorure d'acide, et une fonction amine, ou un sel d'amine.
- 25 - R<sub>3</sub>, R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub>, R<sub>6</sub>, R<sub>7</sub> représentent des radicaux hydrocarbonés alkyles linéaires ou ramifiés, aromatiques substitués ou non alkylaryles, arylalkyles ou cycloaliphatiques pouvant comprendre des insaturations

Selon une caractéristique préférentielle de l'invention, le radical R est un radical aromatique, R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> représentant chacun une liaison covalente.

Par ailleurs, les fonctions B et A de la formule I sont respectivement une fonction acide et une fonction amine, le nombre n de fonction acide étant avantageusement égal à 2.

35 Ainsi, les monomères polyfonctionnels convenables et préférés de l'invention sont, notamment, les monomères stables thermiquement à une température supérieure à 150°C. A titre d'exemple, on peut citer les monomères polyfonctionnels conformes à la formule I

dans laquelle R représente un radical aromatique tel que l'acide aminophthalique, ou un radical aliphatique linéaire tel que le diacide 3-aminopimélique, ou l'acide 6-amino undécandioïque. On peut également citer les  $\alpha$ -aminoacides tels que l'acide aspartique, l'acide glutamique. Les aminoacides naturels peuvent également être utilisés comme monomère polyfonctionnel si leur stabilité thermique est suffisante.

Les monomères difonctionnels de formules II à IV sont les monomères utilisés pour la fabrication de polyamide thermoplastique linéaires. Ainsi, on peut citer les composés  $\omega$ -aminoalcanoïque comportant une chaîne hydrocarbonée ayant de 4 à 12 atomes de carbone, ou les lactames dérivés de ces acides aminoacides comme l' $\epsilon$ -caprolactame, les diacides carboxyliques aliphatiques saturés ayant de 6 à 12 atomes de carbone tels que, par exemple l'acide adipique, acide azélaïque, acide sébacique, acide dodécanoïque, les diamines biprimaires de préférence aliphatiques saturées linéaires ou ramifiées ayant de 6 à 12 atomes de carbone telles que, par exemple, l'hexaméthylène diamine, la triméthylhexaméthylène diamine, la tétraméthylène diamine, la m-xylène diamine.

Bien entendu, des mélanges de ces monomères peuvent être utilisés.

Les monomères bifonctionnels préférés de l'invention sont l' $\epsilon$ -caprolactame, ou l'hexaméthylène diamine et l'acide adipique ou un mélange de ceux-ci.

Selon une autre caractéristique de l'invention, le rapport molaire entre les monomères multifonctionnels de formule I et la somme des monomères bifonctionnels de formules II à IV et monomères monofonctionnels de formules V et VI est compris entre 0,01 % et 5 %, de préférence entre 0,05 % et 1 % pour obtenir un copolyamide présentant un niveau de propriétés mécaniques équivalent à celui du polyamide linéaire correspondant.

Le copolyamide de l'invention présente un indice de fluidité en milieu fondu (M.F.I.) inférieur à 5 g/10 min (mesuré à 275°C sous une charge de 2160 g), et avantageusement un indice de distribution D des masses moléculaires supérieur à 2.

L'indice de distribution D des masses moléculaires est une fonction du degré de polymérisation DPn et du facteur de fonctionnalité F du polymère.

Le facteur de fonctionnalité F est calculé par la relation :

$$F = 1 + \frac{N_2}{N_1 + N_2}$$

dans laquelle

- $N_2$  représente le nombre de moles du composé polyfonctionnel,
- $N_1$  représente le nombre de moles de caprolactame ou monomère bifonctionnel,

DPn est calculé par la relation suivante :

$$DPn = \frac{A_2 / B_2 - 1}{F - 1}$$

5

dans laquelle :

- $B_2$  représente la concentration en nombre de fonctions  $NH_2$  dans le polymère fini, et
- $A_2$  la concentration en nombre de fonction  $COOH$  dans le même polymère fini.

Le coefficient de distribution D est donné par la formule suivante :

10

$$D = \frac{A_2 / B_2 + 1}{F}$$

Il est également possible de déterminer le nombre de branches du polymère hyperbranché selon la formule suivante :

$$R = B_2/A_2 - 1, \text{ ou } R = DPn(F-1)$$

Ainsi, on peut tracer des courbes permettant de déterminer le nombre de branches R et, le coefficient de distribution D en fonction du degré de polymérisation DPn pour différentes valeurs du facteur de fonctionnalité F.

20

Des exemples de ces courbes sont représentés dans les figures 1a et 1b annexées.

25

Les copolymères de l'invention présentent également une résistance aux chocs améliorée par rapport aux polyamides linéaires obtenus par les monomères bifonctionnels correspondants. Ainsi, dans le cas d'un copolymère obtenu par utilisation de l' $\epsilon$ -caprolactame comme monomère bifonctionnel, la résistance aux chocs du copolyamide est supérieure à 60 J/m, celle du polyamide linéaire correspondant c'est-à-dire le polycaprolactame, est inférieure à 50 J/m.

De tels copolyamides peuvent être utilisés dans de nombreuses applications telles que la fabrication de pièces moulées ou injectées.

30

Ils sont notamment convenables pour la fabrication de pièces par les techniques d'extrusion-soufflage. En effet, la faible fluidité en milieu fondu du copolyamide permet de limiter les déformations des parois lors de leur extrusion, avant l'étape de soufflage.

35

On peut également fabriquer avec les copolyamides de l'invention des articles par les procédés d'injection. Ces articles présentent des propriétés mécaniques nettement plus élevées que celles des articles obtenus par injection d'une composition à base de polyamide linéaire de même fluidité en milieu fondu.

Le copolyamide de l'invention peut être également utilisé comme matrice polymérique pour la réalisation de compositions comprenant différents additifs ou charges de renfort ou de remplissage.

L'invention a également pour objet une composition notamment destinée à être moulée pour former des pièces ou articles. Cette composition comprend comme matrice polymérique au moins un polyamide conforme à l'invention et éventuellement d'autres additifs tels que des aides au moulage ou démoulage, stabilisants chaleur, stabilisants lumière, antioxydants, ignifugeants, pigments, colorants et lubrifiants.

La composition peut également comprendre des agents améliorant la résistance aux chocs et/ou des charges de remplissage ou de renfort.

Les compositions de l'invention peuvent également comprendre comme matrice polymérique, en plus du polyamide tel que décrit ci-dessus, d'autres matières thermoplastiques telles que des polyamides linéaires aliphatiques ou des polyamides aromatiques ou semi-aromatiques, par exemple.

Selon une caractéristique de l'invention, les compositions de l'invention sont obtenues par mélange généralement dans une extrudeuse mono ou bivis, d'un polyamide conforme à l'invention avec les différents additifs, ce mélange étant réalisé généralement à l'état fondu du polyamide, puis extrusion du mélange sous forme de joncs qui sont ensuite découpés en granulés. Les pièces moulées sont ensuite réalisées par fusion des granulés produits ci-dessus et alimentation de la composition à l'état fondu dans les dispositifs de moulage, d'injection ou d'extrusion appropriés.

L'invention a également pour objet un procédé de fabrication d'un copolyamide conforme à l'invention.

Dans un premier mode de réalisation de ce procédé de fabrication, un mélange de monomères est réalisé avec des proportions déterminées de chaque composant. Ledit mélange est polymérisé dans des conditions et selon un mode opératoire équivalents à ceux utilisés pour la fabrication du polyamide linéaire correspondant aux monomères bifonctionnels mis en oeuvre. Ainsi, quand de l' $\epsilon$ -caprolactame est mis en oeuvre, de l'eau est ajoutée au mélange de monomères pour amorcer l'ouverture hydrolytique du caprolactame.

Selon un second mode de réalisation de l'invention, un prépolymère de polyamide linéaire est fabriqué par polycondensation des monomères bifonctionnels pour obtenir un prépolymère de poids moléculaire en nombre  $M_n$  de l'ordre de 2000 à 3000 environ.

Le monomère polyfonctionnel est ajouté au prépolymère linéaire et la polymérisation est poursuivie soit en milieu fondu soit en phase solide. Ce mode de réalisation permet notamment d'obtenir des copolyamides hyperbranchés en utilisant des

monomères polyfonctionnels présentant une stabilité thermique à des températures relativement faibles par exemple inférieur à 200°C, car la température de postcondensation en phase solide est réalisée à des températures plus basses que celles de la polymérisation en milieu fondu.

5 L'addition du monomère polyfonctionnel peut être réalisée en extrudeuse ou dans un réacteur, la postcondensation en phase solide étant mise en oeuvre selon les conditions classiques et habituelles utilisées pour celle des polyamides linéaires.

10 Selon une autre variante de ce mode de réalisation du procédé de fabrication d'un copolyamide conforme à l'invention, le monomère polyfonctionnel est ajouté avec un catalyseur permettant ainsi de réaliser la réaction directement dans l'extrudeuse. Les catalyseurs convenables sont les catalyseurs classiquement utilisés pour les réactions d'amidification ou de polycondensation des fonctions amides tels que les composés phosphorés par exemple.

15 D'autres détails et avantages de l'invention apparaîtront plus clairement au vu des exemples donnés ci-dessous uniquement à titre d'illustration et au vu des figures annexées dans lesquelles :

- les figures 1a et 1b représentent des graphiques comprenant un ensemble de courbes pour des valeurs du facteur de fonctionnalité F différentes représentant respectivement la variation du coefficient de distribution D et du nombre de branches R en fonction du Degré de polymérisation DPn, et
- la figure 2 représente la variation de l'indice de fluidité en milieu fondu en fonction de la viscosité relative d'un polyamide linéaire et d'un copolyamide conforme à l'invention et correspondant aux exemples B et 4

25 Exemples 1 à 3

La synthèse de copolyamide conforme à l'invention a été réalisée en ajoutant dans la masse réactionnelle d' $\epsilon$ -caprolactame d'un procédé classique de préparation de polyamide 6, des quantités déterminées d'un monomère polyfonctionnel conforme à la formule I, à savoir l'acide 5-amino isophthalique.

La réaction de polymérisation a été réalisée pendant 12 heures à 270°C sous atmosphère inerte (azote).

Pour initier la polymérisation par la coupure hydrolytique du caprolactame, une faible quantité d'eau est ajoutée au milieu réactionnel.

35 Pour chaque polymère obtenu, on mesure la viscosité relative  $\eta$ , la concentration en nombre de terminaisons amine et acide ainsi que le facteur de distribution des masses moléculaires D et l'indice de fluidité en milieu fondu (MFI).

Cet indice est déterminé selon la norme ASTM D1238 sous une charge de 2160 g et à une température de 275°C.

La viscosité relative  $\eta$  est déterminée avec une solution à 1 % poids de polymère dans de l'acide sulfurique à 96 %.

L'indice de distribution D est une fonction du degré de polymérisation DPn et du facteur de fonctionnalité F du polymère.

Les nombres de terminaisons amine et acide dans le copolyamide final sont déterminés par analyse potentiométrique et sont exprimés en meq/kg de polymère

Tableau I

10

Ex.	AIT % molaire	H <sub>2</sub> O % poids	MFI 9/10 min	D	A meq/kg NH <sub>2</sub>	B meq/kg COOH	$\eta$
A	--	0,042	6,6	2	30,9	31,9	3,89
1	0,25	0,10	0,38	3	27	53,9	4,55
2	0,50	0,1	0,53	3,8	21	59,3	4,45
3	1,00	0,07	0,83	6,66	16,5	94	4,36

AIT : acide amino-5 isophthalique

#### Exemples 4 à 8

Des essais réalisés selon le mode opératoire des exemples 1 à 3 avec 0,5 % en mole d'acide 5-amino isophthalique ont été effectués avec des durées de polymérisation différentes. Les résultats sont indiqués dans le tableau II ci-dessous.

Tableau II

Ex	Durée de polymérisation (h)	MFI g/10 min	A <sub>2</sub> (NH <sub>2</sub> ) (meq/Kg)	B <sub>2</sub> (COOH) (meq/Kg)	$\eta$
B	12	14,1	43,3	36,1	3,56
4	4	14,6	35,1	78,2	3,02
5	6	12,5	32,7	71,7	3,18
6	8	10,7	30,3	74	3,33
7	10	2,9	29,7	62,4	3,72
8	12	1,3	26,2	60,9	3,87

Ces résultats démontrent que pour obtenir un polyamide présentant un indice de fluidité en milieu fondu équivalent à celui d'un polyamide linéaire, la durée de polymérisation peut être divisée par 3. Par ailleurs, le polyamide de l'invention peut présenter un indice de fluidité en milieu fondu dix à vingt fois inférieur à celui d'un polyamide linéaire. La variation de cet indice de fluidité en milieu fondu en fonction de la viscosité est illustrée par la figure 2 annexée.

Les propriétés mécaniques du copolyamide obtenu à l'exemple 4 ont été déterminées sur des éprouvettes de largeur 12,57 mm, épaisseur 3,16 mm et longueur 50 ou 80 mm. Le tableau III ci-dessous rassemble ces résultats en comparaison avec un polyamide linéaire PA 6.

Tableau III

Propriétés	Polyamide ramifié de l'exemple 4	Polyamide linéaire PA6
Viscosité relative	3,33	3,4
Nombre de fonctions terminales NH <sub>2</sub> (meq/Kg)	30	38
Nombre de fonctions terminales COOH (meq/Kg)	74	37
Résistance aux chocs IZOD (Norme ASTM D256) (J/m)	70,6	40-50
Module de flexion (Norme ASTM D638) (N/mm <sup>2</sup> )	2650	2750
Résistance à la traction (N/mm <sup>2</sup> )	75,2	70
Allongement %	180	200

REVENDICATIONS

1 - Copolyamide thermoplastique caractérisé en ce qu'il résulte de la réaction entre au moins un monomère multifonctionnel répondant à la formule générale I suivante :

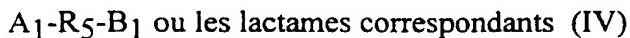


dans laquelle :

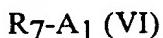
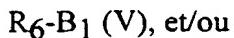
- n est un nombre entier supérieur ou égal à 2, de préférence compris entre 2 et 10 (bornes incluses)
- R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> peuvent être identiques ou différents et représentent une liaison covalente, un radical hydrocarboné aliphatique, arylaliphatique, aromatique ou alkylaromatique
- R est un radical aliphatique linéaire ou ramifié, un radical cycloaliphatique substitué ou non, un radical aromatique substitué ou non pouvant comprendre plusieurs noyaux aromatiques et/ou des hétéroatomes, une chaîne polymérique pouvant contenir des hétéroatomes,
- A représente la fonction amine ou sel et amine, ou la fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide
- B représente la fonction amine ou sel d'amine quand A représente une fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide, et une fonction acide, ester, halogénure d'acide ou amide quand A représente une fonction amine ou sel d'amine,

et, au moins un des monomères bifonctionnels de formules II à IV suivantes avec éventuellement des monomères monofonctionnels de formule V ou VI suivantes, ou avec un prépolymère obtenu à partir d'au moins un monomère bifonctionnel de formules II à IV suivantes et, éventuellement au moins un monomère monofonctionnel de formules V ou VI suivantes,

- les monomères bifonctionnels répondant aux formules générales suivantes:



- les monomères monofonctionnels répondant aux formules générales suivantes :



dans lesquelles :

- 35                    - A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub> représentent respectivement une fonction acide, ester ou chlorure d'acide, et une fonction amine, ou un sel d'amine.

- R<sub>3</sub>, R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub>, R<sub>6</sub>, R<sub>7</sub> représentent des radicaux hydrocarbonés alkyles linéaires ou ramifiés, aromatiques substitués ou non alkylaryles, arylalkyles ou cycloaliphatiques pouvant comprendre des insaturations

5 2 - Copolyamide selon la revendication 1, caractérisé en ce que le radical R est un radical aromatique.

10 3 - Copolyamide selon la revendication 1 ou 2, caractérisé en ce que le rapport molaire entre les monomères multifonctionnels de formule I et la somme des monomères difonctionnels de formule II, III, IV et monofonctionnels de formules V et VI est compris entre 0,01 % et 5 %, de préférence entre 0,05 % et 1 %.

15 4 - Copolyamide selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que le monomère de formule I est un composé dans lequel A représente la fonction amine, B la fonction acide, n est égal à 2 et R représente un radical aromatique, R<sub>1</sub> et R<sub>2</sub> représentent une liaison covalente.

20 5 - Copolyamide selon l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que le monomère de formule I est l'acide 5-amino-isophthalique.

6 - Copolyamide selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que le monomère de formule I est l'acide 6-amino-undécandioïque.

25 7 - Copolyamide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il présente un indice de fluidité (MFI) en milieu fondu inférieur à 5 g/10 min (mesuré à 275°C sous une charge de 2160 g).

30 8. Copolyamide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il présente un indice de distribution D des masses moléculaires supérieur à 2.

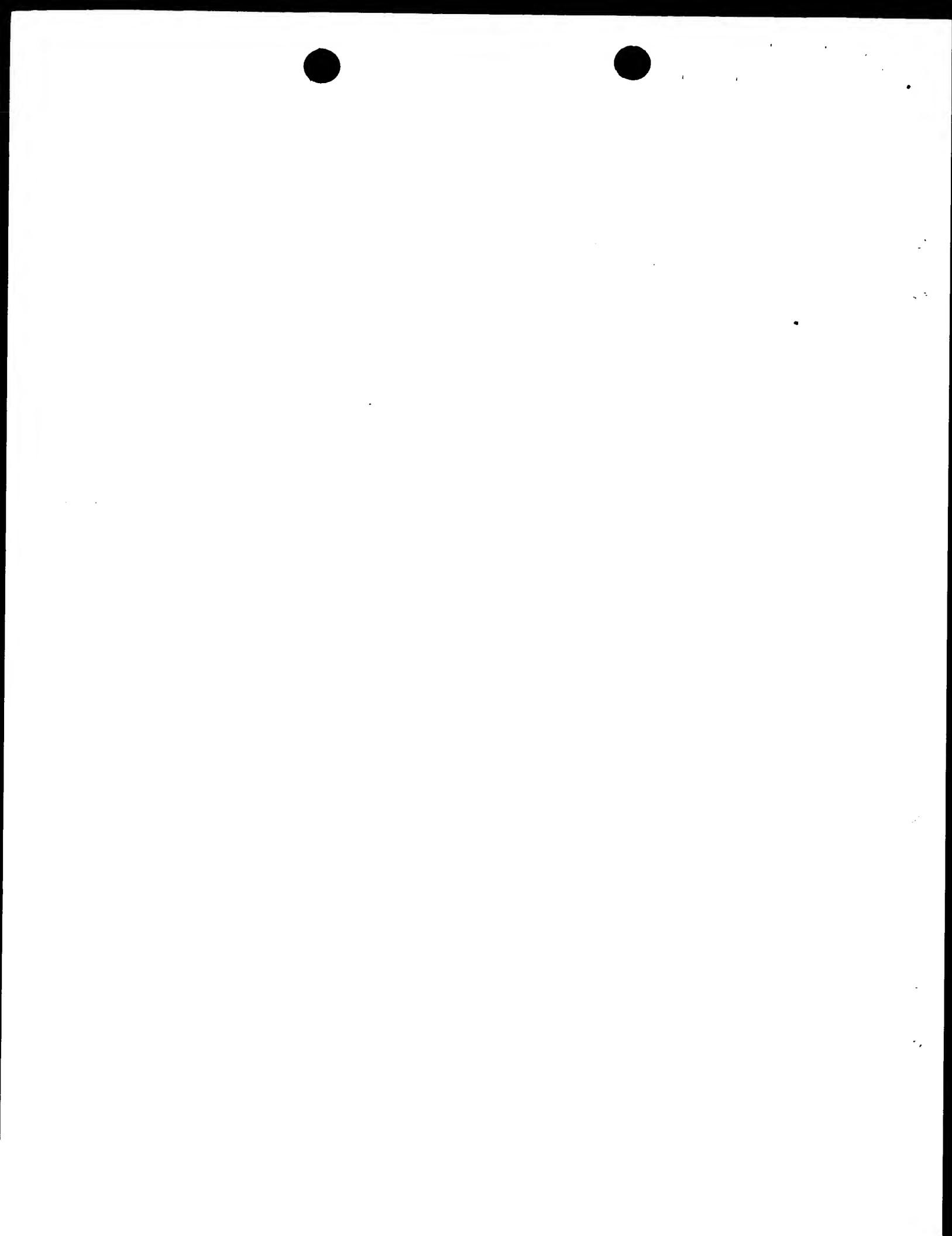
35 9 - Procédé de fabrication d'un copolyamide selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce qu'il consiste à ajouter dans la masse réactionnelle contenant des monomères bifonctionnels de formules II à IV et, éventuellement des monomères monofonctionnels de formules V ou VI, conduisant à un polyamide linéaire, une quantité déterminée d'un monomère plurifonctionnel de formule I, puis à réaliser la polycondensation dans les conditions de température et pression utilisées pour la polymérisation dudit polyamide linéaire.

10 - Procédé de fabrication d'un copolyamide selon l'une des revendications 1 à 8, caractérisé en ce qu'il consiste à synthétiser un prépolymère d'un polyamide linéaire à partir de monomère(s) de formules II à IV et, éventuellement des monomères monofonctionnels de formule V ou VI, à ajouter à cedit prépolymère en milieu solide ou 5 fondu une quantité déterminée de monomère polyfonctionnel, puis à faire réagir ledit monomère polyfonctionnel et ledit prépolymère soit en phase solide soit en phase fondu.

11 - Procédé selon la revendication 10, caractérisé en ce qu'un catalyseur d'amidification ou de polycondensation est ajouté avec le monomère polyfonctionnel.

10

12 - Composition comprenant comme matrice au moins un copolyamide selon l'une des revendications 1 à 8 et d'autres composants choisis dans le groupe comprenant des charges de renfort, des charges de remplissage, des additifs antioxydants, de stabilisation, des pigments, des colorants, des ignifugeants, des additifs d'aide au moulage.



1/2

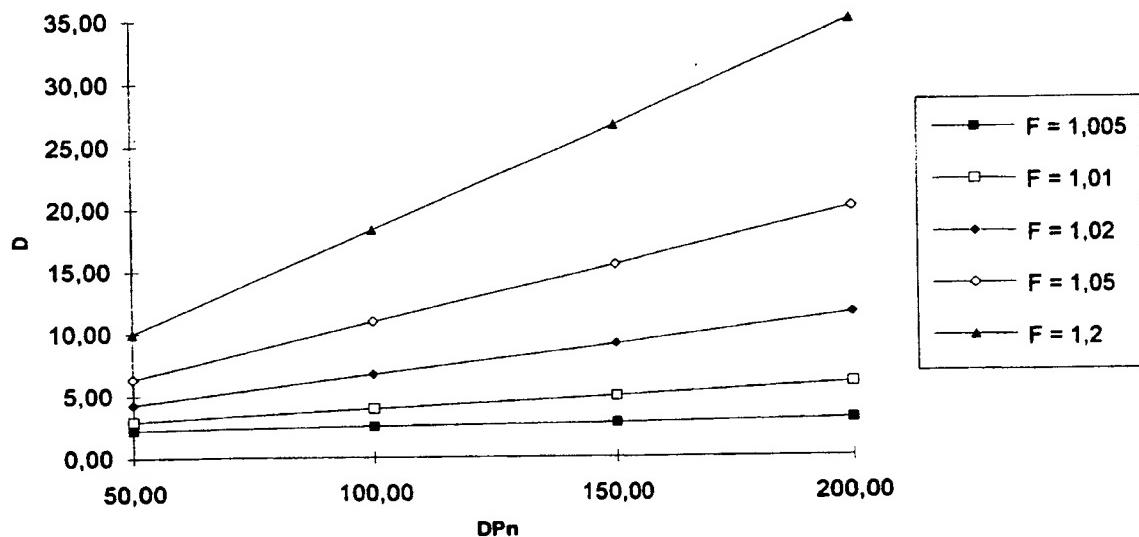


FIG 1a

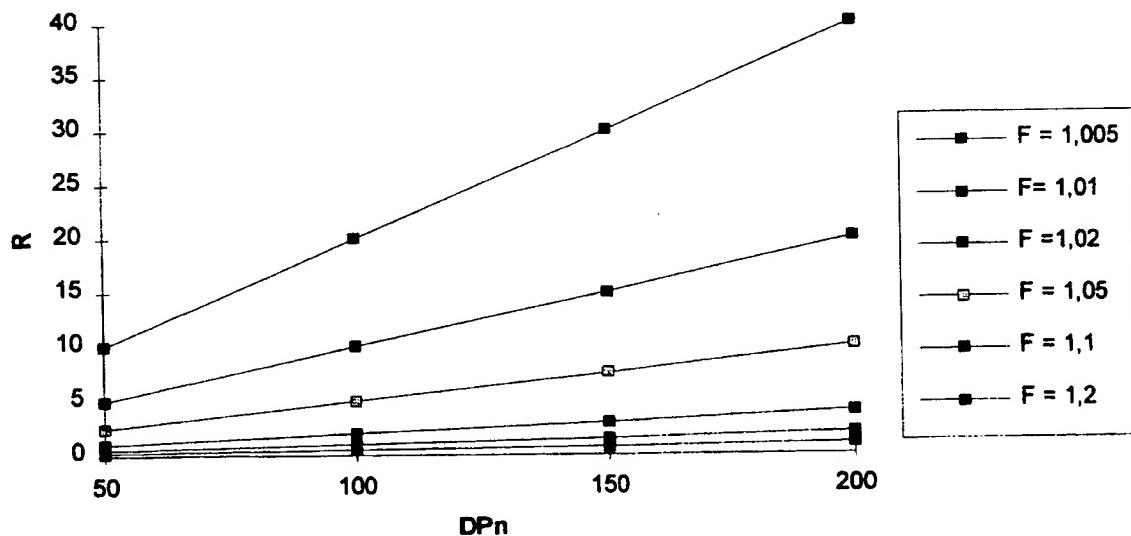


FIG 1b

428 Doc'd PCT/PTO 07 JAN 2000

2/2

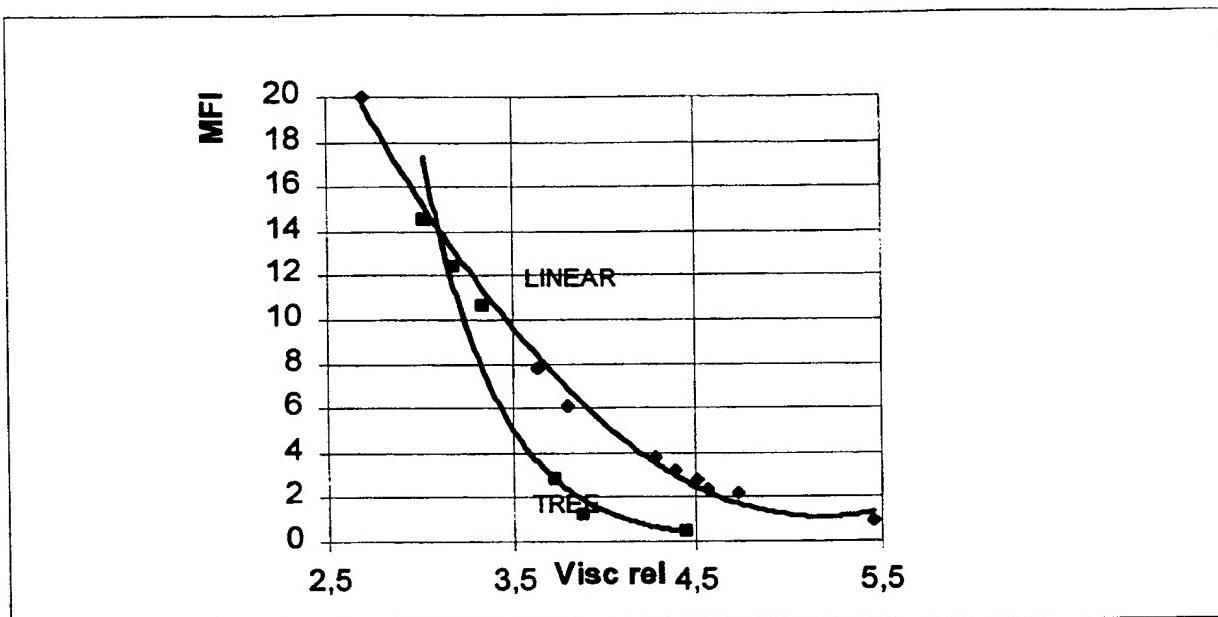


FIG 2

420 Rec'd PCT/PTO 07 JAN 2000

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

National Application No

PCT/EP 98/03858

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C08G69/00 C08G69/26 C08G69/32 C08G83/00

According to International Patent Classification(IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C08G

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 95 06081 A (ALLIED SIGNAL INC) 2 March 1995 -----	
A	WO 93 09162 A (DU PONT) 13 May 1993 -----	
A	WO 92 08749 A (CORNELL RES FOUNDATION INC) 29 May 1992 -----	

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

### ° Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

Date of mailing of the international search report

11 September 1998

21/09/1998

### Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

### Authorized officer

Leroy, A

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/03858

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
WO 9506081	A	02-03-1995	US	5493000 A	20-02-1996
WO 9309162	A	13-05-1993	US	5264543 A	23-11-1993
			CA	2120922 A	13-05-1993
			EP	0610400 A	17-08-1994
			JP	7500370 T	12-01-1995
			US	5321162 A	14-06-1994
WO 9208749	A	29-05-1992	AT	152147 T	15-05-1997
			CA	2096144 A	20-05-1992
			DE	69125846 D	28-05-1997
			DE	69125846 T	27-11-1997
			EP	0558556 A	08-09-1993
			JP	6502442 T	17-03-1994
			US	5514764 A	07-05-1996

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Document Internationale No  
PCT/EP 98/03858

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE  
CIB 6 C08G69/00 C08G69/26 C08G69/32 C08G83/00

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

## B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)

CIB 6 C08G

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés)

## C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	WO 95 06081 A (ALLIED SIGNAL INC) 2 mars 1995 ---	
A	WO 93 09162 A (DU PONT) 13 mai 1993 ---	
A	WO 92 08749 A (CORNELL RES FOUNDATION INC) 29 mai 1992 -----	

Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

### \* Catégories spéciales de documents cités:

- "A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
- "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
- "L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (elle qu'indiquée)
- "O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
- "P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention

"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément

"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier

"&" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

11 septembre 1998

21/09/1998

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale  
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Leroy, A

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Internationale No

PCT/EP 98/03858

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)		Date de publication
WO 9506081 A	02-03-1995	US	5493000 A	20-02-1996
WO 9309162 A	13-05-1993	US	5264543 A	23-11-1993
		CA	2120922 A	13-05-1993
		EP	0610400 A	17-08-1994
		JP	7500370 T	12-01-1995
		US	5321162 A	14-06-1994
WO 9208749 A	29-05-1992	AT	152147 T	15-05-1997
		CA	2096144 A	20-05-1992
		DE	69125846 D	28-05-1997
		DE	69125846 T	27-11-1997
		EP	0558556 A	08-09-1993
		JP	6502442 T	17-03-1994
		US	5514764 A	07-05-1996